

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

NOTIFICATION OF THE RECORDING
OF A CHANGE(PCT Rule 92bis.1 and
Administrative Instructions, Section 422)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

EPPING HERMANN & FISCHER
Postfach 12 10 26
80034 München
ALLEMAGNE

Date of mailing (day/month/year) 12 January 2001 (12.01.01)	IMPORTANT NOTIFICATION
Applicant's or agent's file reference 99P3169P	
International application No. PCT/DE00/00783	International filing date (day/month/year) 13 March 2000 (13.03.00)

1. The following indications appeared on record concerning:

☐ the applicant ☐ the inventor ☐ the agent ☒ the common representative

Name and Address SIEMENS AKTIENGESELLSCHAFT Postfach 22 16 34 D-80506 München Germany	State of Nationality	State of Residence
	Telephone No. (089) 636-8 28 19	
	Facsimile No. (089) 636-8 18 57	
	Teleprinter No.	

2. The International Bureau hereby notifies the applicant that the following change has been recorded concerning:

☒ the person ☐ the name ☒ the address ☐ the nationality ☐ the residence

Name and Address EPPING HERMANN & FISCHER Postfach 12 10 26 80034 München Germany	State of Nationality	State of Residence
	Telephone No. (089) 500-3290	
	Facsimile No. (089) 500-32999	
	Teleprinter No.	

3. Further observations, if necessary:

An agent has been appointed as indicated in Box 2.

4. A copy of this notification has been sent to:

<input checked="" type="checkbox"/> the receiving Office	<input type="checkbox"/> the designated Offices concerned
<input type="checkbox"/> the International Searching Authority	<input checked="" type="checkbox"/> the elected Offices concerned
<input checked="" type="checkbox"/> the International Preliminary Examining Authority	<input type="checkbox"/> other:

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Facsimile No.: (41-22) 740.14.35	Authorized officer Yolaine CUSSAC Telephone No.: (41-22) 338.83.38
---	--

THIS PAGE BLANK (USPTO)

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

NOTIFICATION OF ELECTION

(PCT Rule 61.2)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

Commissioner
 US Department of Commerce
 United States Patent and Trademark
 Office, PCT
 2011 South Clark Place Room
 CP2/5C24
 Arlington, VA 22202
 ETATS-UNIS D'AMERIQUE

in its capacity as elected Office

Date of mailing (day/month/year) 22 November 2000 (22.11.00)	
International application No. PCT/DE00/00783	Applicant's or agent's file reference 99P3169P
International filing date (day/month/year) 13 March 2000 (13.03.00)	Priority date (day/month/year) 24 March 1999 (24.03.99)
Applicant KANITZ, Andreas et al	

1. The designated Office is hereby notified of its election made:

☒ in the demand filed with the International Preliminary Examining Authority on:

24 October 2000 (24.10.00)

☐ in a notice effecting later election filed with the International Bureau on:

2. The election ☒ was
☐ was not

made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 applies, within the time limit under Rule 32.2(b).

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Facsimile No.: (41-22) 740.14.35	Authorized officer R. Forax Telephone No.: (41-22) 338.83.38
---	--

THIS PAGE BLANK (USPTO)

VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT
AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

PCT

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

(Artikel 18 sowie Regeln 43 und 44 PCT)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts 99P3169P	WEITERES VORGEHEN siehe Mitteilung über die Übermittlung des internationalen Recherchenberichts (Formblatt PCT/ISA/220) sowie, soweit zutreffend, nachstehender Punkt 5	
Internationales Aktenzeichen PCT/DE 00/ 00783	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 13/03/2000	(Frühestes) Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) 24/03/1999
Anmelder SIEMENS AKTIENGESELLSCHAFT		

Dieser internationale Recherchenbericht wurde von der Internationalen Recherchenbehörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 18 übermittelt. Eine Kopie wird dem Internationalen Büro übermittelt.

Dieser internationale Recherchenbericht umfaßt insgesamt 2 Blätter.

☒ Darüber hinaus liegt ihm jeweils eine Kopie der in diesem Bericht genannten Unterlagen zum Stand der Technik bei.

1. Grundlage des Berichts

- a. Hinsichtlich der **Sprache** ist die internationale Recherche auf der Grundlage der internationalen Anmeldung in der Sprache durchgeführt worden, in der sie eingereicht wurde, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

☐ Die internationale Recherche ist auf der Grundlage einer bei der Behörde eingereichten Übersetzung der internationalen Anmeldung (Regel 23.1 b)) durchgeführt worden.

- b. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale Recherche auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das

☐ in der internationalen Anmeldung in Schriftlicher Form enthalten ist.

☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.

☐ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.

☐ bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.

☐ Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.

☐ Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfaßten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

2. ☐ Bestimmte Ansprüche haben sich als nicht recherchierbar erwiesen (siehe Feld I).

3. ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung (siehe Feld II).

4. Hinsichtlich der Bezeichnung der Erfindung

☒ wird der vom Anmelder eingereichte Wortlaut genehmigt.

☐ wurde der Wortlaut von der Behörde wie folgt festgesetzt:

5. Hinsichtlich der Zusammenfassung

☒ wird der vom Anmelder eingereichte Wortlaut genehmigt.

☐ wurde der Wortlaut nach Regel 38.2b) in der in Feld III angegebenen Fassung von der Behörde festgesetzt. Der Anmelder kann der Behörde innerhalb eines Monats nach dem Datum der Absendung dieses internationalen Recherchenberichts eine Stellungnahme vorlegen.

6. Folgende Abbildung der Zeichnungen ist mit der Zusammenfassung zu veröffentlichen: Abb. Nr. 2

☒ wie vom Anmelder vorgeschlagen

☐ weil der Anmelder selbst keine Abbildung vorgeschlagen hat.

☐ weil diese Abbildung die Erfindung besser kennzeichnet.

☐ keine der Abb.

THIS PAGE BLANK (USP162

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES
IPK 7 H01L51/20

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 7 H01L

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, INSPEC, PAJ

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	EP 0 869 701 A (MITSUBISHI CHEM CORP) 7. Oktober 1998 (1998-10-07) das ganze Dokument -----	1-10



Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen



Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

A Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

E älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

L Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

O Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

P Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

T Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

X Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

Y Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

G Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

19. Juli 2000

Absenddatum des internationalen Recherchenberichts

26/07/2000

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde

Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2

NL - 2280 HV Rijswijk

Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,

Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

van der Linden, J.E.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/DE 00/00783

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
EP 0869701 A	07-10-1998	JP 11026167 A	29-01-1999

THIS PAGE BLANK (USPTO)

PCT

WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM
Internationales Büro

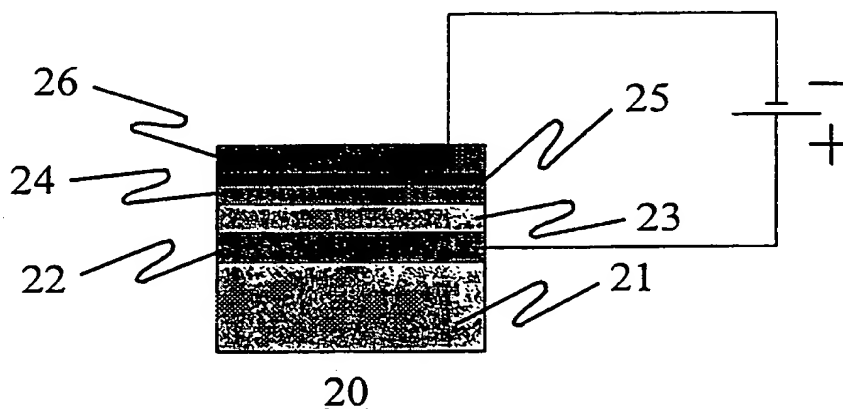


INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE
INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

<p>(51) Internationale Patentklassifikation ⁷ : H01L 51/20</p>	<p>A1</p>	<p>(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: WO 00/57499</p> <p>(43) Internationales Veröffentlichungsdatum: 28. September 2000 (28.09.00)</p>
<p>(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/DE00/00783</p> <p>(22) Internationales Anmeldedatum: 13. März 2000 (13.03.00)</p> <p>(30) Prioritätsdaten: 199 13 350.6 24. März 1999 (24.03.99) DE</p> <p>(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): SIEMENS AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; Wittelsbacherplatz 2, D-80333 München (DE).</p> <p>(72) Erfinder; und</p> <p>(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): KANITZ, Andreas [DE/DE]; Nackendorf 27, D-91315 Höchststadt (DE). STÖSSEL, Matthias [DE/DE]; Äussere Tennenloher Strasse 47, D-91058 Erlangen (DE).</p> <p>(74) Gemeinsamer Vertreter: SIEMENS AKTIENGE- SELLSCHAFT; Postfach 22 16 34, D-80506 München (DE).</p>		<p>(81) Bestimmungsstaaten: CA, CN, JP, KR, US, europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).</p> <p>Veröffentlicht Mit internationalem Recherchenbericht. Vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche zugelassenen Frist; Veröffentlichung wird wiederholt falls Änderungen eintreffen.</p>

(54) Title: ORGANIC ELECTROLUMINESCENT COMPONENT

(54) Bezeichnung: ORGANISCHES ELEKTROLUMINESZIERENDES BAUTEIL



(57) Abstract

The invention relates to an organic electroluminescent component consisting of the following: a transparent bottom electrode (22) which is located on a substrate (21), a top electrode (26) consisting of a metal that is inert towards oxygen and moisture; at least one organic functional layer (23, 24) which is located between the bottom electrode (22) and the top electrode (26) and a charge carrier injection layer (25) containing a metal complex salt with the composition $(Me_1)(Me_2)F_{m+n}$, m and n each being a whole number in accordance with the valence of the metals Me1 and Me2, Me1 = Li, Na, K, Mg or Ca, Me2 = Mg, Al, Ca, Zn, Ag, Sb, Ba, Sm or Yb, on the condition that Me1 \neq Me2.

(57) Zusammenfassung

Das organische elektrolumineszierende Bauteil nach der Erfindung weist folgende Bestandteile auf: eine auf einem Substrat (21) befindliche transparente Bottom-Elektrode (22), eine Top-Elektrode (26) aus einem gegen Sauerstoff und Feuchtigkeit inerten Metall, wenigstens eine zwischen der Bottom-Elektrode (22) und der Top-Elektrode (26) angeordnete organische Funktionsschicht (23, 24) und eine ein Metallkomplexsalz der Zusammensetzung $(Me_1)(Me_2)F_{m+n}$ enthaltende Ladungsträgerinjektionsschicht (25), wobei folgendes gilt: m und n sind jeweils eine ganze Zahl entsprechend der Wertigkeit der Metalle Me1 und Me2, Me1 = Li, Na, K, Mg oder Ca, Me2 = Mg, Al, Ca, Zn, Ag, Sb, Ba, Sm oder Yb, mit der Maßgabe: Me1 \neq Me2.

LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AL	Albanien	ES	Spanien	LS	Lesotho	SI	Slowenien
AM	Armenien	FI	Finnland	LT	Litauen	SK	Slowakei
AT	Österreich	FR	Frankreich	LU	Luxemburg	SN	Senegal
AU	Australien	GA	Gabun	LV	Lettland	SZ	Swasiland
AZ	Aserbaidshjan	GB	Vereinigtes Königreich	MC	Monaco	TD	Tschad
BA	Bosnien-Herzegowina	GE	Georgien	MD	Republik Moldau	TG	Togo
BB	Barbados	GH	Ghana	MG	Madagaskar	TJ	Tadschikistan
BE	Belgien	GN	Guinea	MK	Die ehemalige jugoslawische Republik Mazedonien	TM	Turkmenistan
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland	ML	Mali	TR	Türkei
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	MN	Mongolei	TT	Trinidad und Tobago
BJ	Benin	IE	Irland	MR	Mauretanien	UA	Ukraine
BR	Brasilien	IL	Israel	MW	Malawi	UG	Uganda
BY	Belarus	IS	Island	MX	Mexiko	US	Vereinigte Staaten von Amerika
CA	Kanada	IT	Italien	NE	Niger	UZ	Usbekistan
CF	Zentralafrikanische Republik	JP	Japan	NL	Niederlande	VN	Vietnam
CG	Kongo	KE	Kenia	NO	Norwegen	YU	Jugoslawien
CH	Schweiz	KG	Kirgisistan	NZ	Neuseeland	ZW	Zimbabwe
CI	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik Korea	PL	Polen		
CM	Kamerun	KR	Republik Korea	PT	Portugal		
CN	China	KZ	Kasachstan	RO	Rumänien		
CU	Kuba	LC	St. Lucia	RU	Russische Föderation		
CZ	Tschechische Republik	LI	Liechtenstein	SD	Sudan		
DE	Deutschland	LK	Sri Lanka	SE	Schweden		
DK	Dänemark	LR	Liberia	SG	Singapur		
EE	Estland						

Beschreibung

Organisches elektrolumineszierendes Bauteil

- 5 Die Erfindung betrifft ein organisches elektrolumineszierendes Bauteil, insbesondere eine organische lichtemittierende Diode.

- 10 Wegen der starken Zunahme der Informationsmenge gewinnt die Visualisierung von Daten ständig an Bedeutung. Für den Einsatz in mobilen und tragbaren elektronischen Geräten wurde dazu die Technik der Flachbildschirme („Flat Panel Displays“) entwickelt. Der Markt der Flachbildschirme wird derzeit weitgehend von der Technologie der Flüssigkristall-Anzeigen
- 15 (LC-Displays) dominiert. Neben der kostengünstigen Herstellbarkeit, geringer elektrischer Leistungsaufnahme, kleinem Gewicht und geringem Platzbedarf weist die Technik der LC-Displays jedoch auch gravierende Nachteile auf.
- 20 LC-Displays sind nicht selbst-emittierend und daher nur bei besonders günstigen Umgebungslichtverhältnissen leicht abzulesen oder zu erkennen. Dies macht in den meisten Fällen eine Hinterleuchtungseinrichtung erforderlich, die aber die Dicke des Flachbildschirms vervielfacht. Außerdem wird dann
- 25 der überwiegende Anteil der elektrischen Leistungsaufnahme für die Beleuchtung benötigt, und es ist eine höhere Spannung für den Betrieb der Lampen oder Leuchtstoffröhren erforderlich, die meistens mit Hilfe von „Voltage-up-Konvertern“ aus Batterien oder Akkumulatoren erzeugt wird. Weitere Nachteile
- 30 sind der stark eingeschränkte Betrachtungswinkel der LC-Displays und die langen Schaltzeiten einzelner Pixel, welche typischerweise bei einigen Millisekunden liegen und zudem stark temperaturabhängig sind. Der verzögerte Bildaufbau macht sich beispielsweise beim Einsatz in Verkehrsmitteln
- 35 oder bei Videoapplikationen äußerst störend bemerkbar.

Neben den LC-Displays gibt es noch weitere Flachbildschirm-technologien, beispielsweise die Technologie der Flachbildschirm-Kathodenstrahlröhren, der Vakuum-Fluoreszenzanzeigen und der anorganischen Dünnschicht-Elektrolumineszenzanzeigen.

- 5 Diese Technologien haben jedoch entweder noch nicht den erforderlichen technischen Reifegrad erreicht oder sie sind - aufgrund hoher Betriebsspannungen bzw. hoher Herstellungskosten - nur bedingt für den Einsatz in tragbaren elektronischen Geräten geeignet.

10

Anzeigen auf der Basis organischer Leuchtdioden („Organic Light Emitting Diodes“ = OLEDs) weisen die genannten Nachteile nicht auf. Aufgrund der Selbstemissivität entfällt die Notwendigkeit einer Hinterleuchtung, wodurch der Platzbedarf und die elektrische Leistungsaufnahme erheblich reduziert wird. Die Schaltzeiten liegen etwa bei einer Mikrosekunde und sind nur wenig temperaturabhängig, was den Einsatz für Videoapplikationen ermöglicht. Der Ablesewinkel beträgt nahezu 180°, und Polarisationsfolien, wie sie bei LC-Displays erforderlich sind, entfallen, so daß eine größere Helligkeit der Anzeigeelemente erzielbar ist. Weitere Vorteile sind die Verwendbarkeit flexibler und nicht-planarer Substrate sowie eine einfache und kostengünstige Herstellung.

- 25 Der Aufbau organischer Leuchtdioden erfolgt typischerweise folgendermaßen.

Ein transparentes Substrat, beispielsweise Glas, wird großflächig mit einer transparenten Elektrode (Bottom-Elektrode, Anode), beispielsweise aus Indium-Zinn-Oxid (ITO), beschichtet. Je nach Anwendung wird dann die transparente Elektrode - mit Hilfe eines photolithographischen Prozesses - strukturiert.

- 35 Auf das Substrat mit der strukturierten Elektrode werden eine oder mehrere organische Schichten, bestehend aus Polymeren, Oligomeren, niedermolekularen Verbindungen oder Mischungen

hiervon, aufgebracht. Beispiele für Polymere sind Polyanilin, Poly(p-phenylen-vinyl) und Poly(2-methoxy-5-(2'-ethyl)-hexyloxy-p-phenylen-vinyl). Beispiele für niedermolekulare, bevorzugt positive Ladungsträger transportierende Verbindungen sind N,N'-Bis-(3-methylphenyl)-N,N'-bis-(phenyl)-benzidin (m-TPD), 4,4',4''-Tris-(N-3-methylphenyl-N-phenyl-amino)-triphenylamin (m-MTDATA) und 4,4',4''-Tris-(carbazol-9-yl)-triphenylamin (TCTA). Als Emitter wird beispielsweise Hydroxychinolin-Aluminium-III-salz (Alq_3) verwendet, das mit geeigneten Chromophoren dotiert sein kann (Chinacridon-Derivate, aromatische Kohlenwasserstoffe usw.). Gegebenenfalls können zusätzliche Stoffe, welche die elektrooptischen und die Langzeiteigenschaften beeinflussen, wie Kupfer-Phthalocyanin, vorhanden sein. Das Aufbringen von Polymeren erfolgt meistens aus der flüssigen Phase durch Rakeln oder Spin-coating, niedermolekulare und oligomere Verbindungen werden meistens aus der Gasphase durch Aufdampfen oder „Physical Vapor Deposition“ (PVD) abgeschieden. Die Gesamtschichtdicke kann zwischen 10 nm und 10 μm betragen, typischerweise liegt sie im Bereich zwischen 50 und 200 nm.

Auf die organische(n) Schicht(en) wird eine Gegenelektrode (Top-Elektrode, Kathode) aufgebracht, welche üblicherweise aus einem Metall, aus einer Metall-Legierung oder aus einer dünnen Isolatorschicht und einer dicken Metallschicht besteht. Die Herstellung der Kathodenschicht erfolgt meistens mittels Gasphasenabscheidung durch thermisches Verdampfen, Elektronenstrahlverdampfen oder Sputtern.

Wenn als Kathodenmaterial Metalle verwendet werden, so müssen diese eine geringe Austrittsarbeit (typischerweise $< 3,7$ eV) besitzen, damit Elektronen effizient in den organischen Halbleiter injiziert werden können. Meistens werden hierzu Alkalimetalle, Erdalkalimetalle oder Seltenerdmetalle verwendet; die Schichtdicke liegt zwischen 0,2 nm und einigen hundert Nanometern, im allgemeinen jedoch bei einigen 10 Nanometern. Da diese unedlen Metalle unter Atmosphärenbedingungen jedoch

zu Korrosion neigen, ist es erforderlich, auf die Kathodenschicht zusätzlich noch eine Schicht eines edleren, inerteren Metalls, wie Aluminium (Al), Kupfer (Cu), Silber (Ag) oder Gold (Au) aufzubringen, welche die unedle Metallschicht vor Feuchtigkeit und Luftsauerstoff schützt.

Zur Erhöhung der Stabilität der Kathoden gegen eine korrosionsbedingte Defektbildung wird - anstelle eines reinen unedlen Metalls - häufig eine Legierung aus einem effizient elektroneninjizierenden, aber korrosionsanfälligen unedlen Metall (Austrittsarbeit $< 3,7$ eV) und einem korrosionsbeständigen edlen Metall, wie Al, Cu, Ag und Au, verwendet. Der Anteil des unedlen Metalls an der Legierung kann zwischen einigen Promille und etwa 90 % betragen. Die Legierungen werden meistens durch gleichzeitige Abscheidung der Metalle aus der Gasphase, beispielsweise durch Koverdampfen, gleichzeitiges Sputtern mit mehreren Quellen und Sputtern unter Verwendung von Legierungstargets erzeugt. Aber auch auf derartige Kathoden wird meistens zusätzlich noch eine Schicht aus einem edlen Metall, wie Al, Cu, Ag oder Au, als Korrosionsschutz aufgebracht.

Kathoden aus edlen Metallen, d.h. Metallen mit einer Austrittsarbeit $> 3,7$ eV, sind, wenn sie in direktem Kontakt zum organischen Halbleiter eingesetzt werden, sehr ineffiziente Elektroneninjektoren. Wird jedoch zwischen der obersten elektronenleitenden organischen Schicht und der Metallelektrode eine dünne isolierende Zwischenschicht (Schichtdicke im allgemeinen zwischen 0,2 und 5 nm) angeordnet, so steigt die Effizienz der Leuchtdioden erheblich. Als isolierendes Material für eine derartige Zwischenschicht kommen Oxide, wie Aluminiumoxid, Alkali- und Erdalkalioxide und andere Oxide, sowie Alkali- und Erdalkalifluoride in Frage (siehe dazu: Appl. Phys. Lett., Vol. 71 (1997), Seiten 2560 bis 2562; US-PS 5 677 572; EP-OS 0 822 603). Auf die dünne isolierende Zwischenschicht wird dann eine Metallelektrode aufgebracht, die aus einem reinen Metall oder einer Metall-Legierung

besteht. Das isolierende Material kann dabei auch zusammen mit dem Elektrodenmaterial durch Koverdampfen aufgebracht werden (Appl. Phys. Lett., Vol. 73 (1998), Seiten 1185 bis 1187).

5

Aufgabe der Erfindung ist es, ein organisches elektrolumineszierendes Bauteil, insbesondere eine organische lichtemittierende Diode, derart auszugestalten, daß einerseits auf eine hermetische Abdichtung der Top-Elektrode verzichtet werden
10 kann und andererseits die Auswahl an auf der Kathodenseite einsetzbaren Materialien vergrößert wird.

Dies wird erfindungsgemäß durch ein Bauteil erreicht, das gekennzeichnet ist durch

- 15 - eine auf einem Substrat befindliche transparente Bottom-Elektrode,
- eine Top-Elektrode aus einem gegen Sauerstoff und Feuchtigkeit inerten Metall,
- wenigstens eine zwischen der Bottom-Elektrode und der
20 Top-Elektrode angeordnete organische Funktionsschicht und
- eine ein Metallkomplexsalz der Zusammensetzung $(Me_1)(Me_2)F_{m+n}$ enthaltende Ladungsträgerinjektionsschicht, wobei folgendes gilt:
m und n sind jeweils eine ganze Zahl entsprechend der Wertigkeit der Metalle Me_1 und Me_2 (das Metall Me_1 besitzt
25 dabei die Wertigkeit m, das Metall Me_2 die Wertigkeit n),
 $Me_1 = Li, Na, K, Mg$ oder Ca ,
 $Me_2 = Mg, Al, Ca, Zn, Ag, Sb, Ba, Sm$ oder Yb ,
mit der Maßgabe: $Me_1 \neq Me_2$.

30

Das wesentliche Merkmal des organischen elektrolumineszierenden Bauteils nach der Erfindung besteht somit in einem spezifischen Aufbau auf der Kathodenseite, nämlich in der Kombination einer gegenüber Umwelteinflüssen indifferenten
35 Top-Elektrode mit einer Ladungsträgerinjektionsschicht aus einem speziellen Metallkomplexsalz der Zusammensetzung $(Me_1)(Me_2)F_{m+n}$, d.h. einem Doppelfluorid. Aufgrund dieses

Aufbaus kann eine hermetische Abdichtung bzw. Versiegelung der Top-Elektrode unterbleiben. Durch das spezielle Material für die Ladungsträgerinjektionsschicht wird nicht nur das Angebot für die auf der Kathodenseite einsetzbaren Materialien verbreitert, sondern durch dieses Material wird auch eine Verbesserung der Emissionseigenschaften erreicht, die in einer deutlich höheren Lichtausbeute, einer verringerten Betriebsspannung und einer längeren Lebensdauer im Betrieb zum Ausdruck kommt.

Die Ladungsträgerinjektionsschicht (aus einem speziellen Metallkomplexsalz) ist vorzugsweise als dünne Isolierschicht zwischen der Top-Elektrode und der organischen Funktionsschicht angeordnet, beim Vorhandensein mehrerer Funktionsschichten zwischen der obersten Funktionsschicht und der Top-Elektrode. Befindet sich beim Bauteil nach der Erfindung auf der (obersten) Funktionsschicht zusätzlich noch eine Elektronentransportschicht, so ist die Ladungsträgerinjektionsschicht zwischen dieser Schicht und der Top-Elektrode angeordnet. In allen diesen Fällen beträgt die Dicke der Ladungsträgerinjektionsschicht vorzugsweise etwa 0,1 bis 20 nm.

Die Ladungsträgerinjektionsschicht kann quasi aber auch in die Top-Elektrode, in die (oberste) organische Funktionsschicht oder in eine gegebenenfalls vorhandene Elektronentransportschicht integriert sein, d.h. das Metallkomplexsalz ist dann Bestandteil einer der genannten Schichten. Die Herstellung derartiger Schichten kann vorteilhaft durch Koverdampfen der entsprechenden Materialien erfolgen, beispielsweise durch Koverdampfen des Top-Elektrodenmaterials und des Metallkomplexsalzes.

Das Metallkomplexsalz weist die Zusammensetzung $(Me_1)(Me_2)F_{m+n}$ auf, wobei m und n der Wertigkeit des jeweiligen Metalls entsprechen. Für Me_1 gilt: $m = 1$ (Li, Na, K) oder $m = 2$ (Mg, Ca); für Me_2 gilt: $n = 1$ (Ag) oder $n = 2$ (Mg, Ca, Zn, Ba) oder $n = 3$ (Al, Sb, Sm, Yb). Das Metall Me_1 ist vor-

zugsweise Lithium (Li), das Metall Me₂ vorzugsweise Magnesium (Mg), Aluminium (Al), Calcium (Ca), Silber (Ag) oder Barium (Ba).

- 5 Vorteilhaft wird als Metallkomplexsalz eines der Doppel-
fluoride LiAgF₂, LiBaF₃ und LiAlF₄ eingesetzt. Weitere
derartige Doppelfluoride sind beispielsweise NaAgF₂, KAgF₂,
LiMgF₃, LiCaF₃, CaAgF₃ und MgBaF₄. Komplexsalze dieser Art
sowie Verfahren zu deren Herstellung sind an sich bekannt
10 (siehe dazu die Ausführungsbeispiele sowie beispielsweise
„Gmelins Handbuch der Anorganischen Chemie“, 8. Auflage
(1926), System-Nummer 5 (Fluor), Seiten 58 bis 72).

- Die Top-Elektrode, die im allgemeinen eine Dicke > 100 nm
15 aufweist, besteht vorzugsweise aus einem der folgenden
Metalle: Aluminium (Al), Silber (Ag), Platin (Pt) und Gold
(Au). Das Elektrodenmaterial kann aber auch eine Legierung
aus zweien dieser Metalle sein. Als weitere Metalle für die
Top-Elektrode kommen Magnesium (Mg), Calcium (Ca), Zink (Zn),
20 Antimon (Sb) und Barium (Ba) in Betracht.

- Die Bottom-Elektrode besteht im allgemeinen aus Indium-Zinn-
Oxid (ITO). Weitere mögliche Materialien für die Bottom-
Elektrode sind Zinnoxid und Wismutoxid. Als Substrat für die
25 Bottom-Elektrode dient gewöhnlich Glas.

- Das Bauteil nach der Erfindung weist vorzugsweise zwei orga-
nische Funktionsschichten auf, nämlich eine an der Bottom-
Elektrode angeordnete Lochleitschicht, welche positive
30 Ladungsträger transportiert, und eine darauf befindliche
Emissionsschicht, die auch als Lumineszenzschicht bezeichnet
wird. Anstelle einer Lochleitschicht können vorteilhaft auch
zwei oder mehr Lochleitschichten eingesetzt werden.

- 35 Die Materialien für die genannten Schichten sind an sich be-
kannt. Für die Lochleitschicht(en) wird im vorliegenden Fall
vorzugsweise N,N'-Bis-(3-methylphenyl)-N,N'-bis-(phenyl)-

benzidin (m-TPD), 4,4',4''-Tris-(N-1-naphthyl-N-phenylamino)-
triphenylamin (Naphdata) oder N,N'-Bis-phenyl-N,N'-bis-
 α -naphthyl-benzidin (α -NPD) verwendet. Das Material für die
Emissionsschicht ist vorzugsweise Hydroxychinolin-Aluminium-
5 III-salz (Alq_3). Diese Verbindung kann gleichzeitig auch zum
Elektronentransport dienen. Für die Emissionsschicht kann
beispielsweise auch Chinacridon eingesetzt werden, für eine
gegebenenfalls vorhandene Elektronentransportschicht eines
der für diesen Zweck bekannten Oxadiazolderivate.

10

Insbesondere im Hinblick auf organische lichtemittierende
Dioden bietet die Erfindung die folgenden weiteren Vorteile:

- Erleichterte Handhabung

15 Aufgrund der Stabilität des Materials der Top-Elektrode muß
bei der Herstellung und Weiterverarbeitung von OLEDs nicht
unter einer Inertgasatmosphäre gearbeitet werden.

- Performance

Im Vergleich zu Top-Elektroden aus unedlen Metallen ist die
Betriebsspannung deutlich erniedrigt und die Lichtausbeute
20 und Effizienz erheblich gesteigert.

- Verbesserte Eigenschaften

Beispielsweise im Vergleich zu LiF als Material für die
Zwischenschicht haben Verbindungen wie LiAlF_4 den Vorteil,
daß sie weniger hygroskopisch sind, was die Handhabung und
25 Lagerung erleichtert. Die Doppelfluoride lassen sich auch
leichter verdampfen und sind weniger basisch (als LiF),
wodurch die Verträglichkeit mit den organischen Funktions-
schichten erhöht wird.

30 Anhand von Ausführungsbeispielen und Figuren soll die Erfin-
dung noch näher erläutert werden.

Es zeigt:

Figur 1 ein herkömmliches OLED-Display,

Figur 2 ein OLED-Display nach der Erfindung,

35 Figur 3 Leuchtdichte/Spannung-Kennlinien,

Figur 4 Effizienz/Leuchtdichte-Kennlinien,

Figur 5 eine Gegenüberstellung der Leuchtdichte verschiedener Materialien.

Beispiel 1

5

Herstellung von Lithiumaluminiumfluorid LiAlF_4

Lithiumaluminiumhydrid LiAlH_4 wird mit destilliertem Wasser vorsichtig hydrolysiert, anschließend wird mit Flußsäure (HF) im Überschuß umgesetzt. Das dabei ausfallende Metallkomplexsalz LiAlF_4 wird abgesaugt, mehrmals mit Wasser und Ethanol gewaschen und dann getrocknet.

Beispiel 2

15

Herstellung von Lithiumsilberfluorid LiAgF_2

Eine Lösung stöchiometrischer Mengen von Lithiumhydroxid und Silberacetat in Eisessig werden - unter Lichtausschluß - mit Flußsäure (HF) im Überschuß umgesetzt; dabei fällt das Metallkomplexsalz LiAgF_2 aus. Nach der Zugabe des gleichen Volumens Ethanol wird das Komplexsalz abgesaugt, mit Ethanol gewaschen und getrocknet.

Beispiel 3

Herstellung von Lithiumbariumfluorid LiBaF_3

Eine wäßrige Lösung stöchiometrischer Mengen von Lithiumhydroxid und Bariumhydroxid werden mit Flußsäure (HF) im Überschuß umgesetzt. Das Metallkomplexsalz LiBaF_3 fällt in der Kälte (Eiskühlung) aus; es wird abgesaugt, mehrmals mit Ethanol gewaschen und dann getrocknet.

In entsprechender Weise wird das Metallkomplexsalz LiCaF_3 hergestellt, wobei die Reaktionslösung erforderlichenfalls eingeeengt wird.

Das Metallkomplexsalz LiMgF_3 kann in gleicher Weise hergestellt werden, als Ausgangsstoffe werden dabei Lithium-methylat und Magnesiummethylat eingesetzt.

5 Beispiel 4

Herstellung eines herkömmlichen OLED-Displays (10) mit einer Mg/Ag-Kathode (siehe Figur 1)

- 10 Auf ein Glas-Substrat (11) wird eine ITO-Schicht (12) mit einer Dicke von ca. 100 nm aufgebracht. Diese Schicht wird dann photolithographisch in der Weise strukturiert, daß eine streifenförmige Struktur entsteht. Auf das derart vorbehandelte beschichtete Substrat wird - durch thermisches Ver-
- 15 dampfen - zunächst eine Schicht aus m-TPD (13) mit einer Dicke von ca. 100 nm aufgebracht und dann eine Schicht (14) aus Alq_3 mit einer Dicke von ca. 65 nm.

- Auf die organische Schicht (14) wird durch thermisches Ver-
- 20 dampfen mittels zwei gleichzeitig betriebener Verdampferquellen eine Schicht (15) aus einer Magnesium-Silber-Legierung (Mg:Ag-Mischungsverhältnis 10:1) mit einer Dicke von ca. 150 nm aufgebracht und darauf, ebenfalls durch thermisches Verdampfen, eine Schicht (16) aus reinem Silber mit
- 25 einer Dicke von ca. 150 nm. Die Metallschichten werden dabei durch eine Maske mit streifenförmigen Öffnungen aufgedampft, so daß Kathodenstreifen entstehen, welche senkrecht zu den ITO-Streifen liegen. Jeweils an den Kreuzungspunkten der ITO-Bahnen mit den Metallbahnen entstehen auf diese Weise -
- 30 zusammen mit den dazwischenliegenden organischen Schichten - organische Leuchtdioden mit einer aktiven Fläche von $2 \times 2 \text{ mm}^2$. Im Betrieb wird die ITO-Schicht positiv kontaktiert, die Metallbahnen werden negativ kontaktiert.

Beispiel 5

Herstellung eines OLED-Displays (20) nach der Erfindung
(siehe Figur 2)

5

Auf ein Glas-Substrat (21) wird eine ITO-Schicht (22) mit einer Dicke von ca. 100 nm aufgebracht. Diese Schicht wird dann photolithographisch in der Weise strukturiert, daß eine streifenförmige Struktur entsteht. Auf das derart vorbehandelte beschichtete Substrat wird - durch thermisches Verdampfen - zunächst eine Schicht aus m-TPD (23) mit einer Dicke von ca. 100 nm aufgebracht und dann eine Schicht (24) aus Alq₃ mit einer Dicke von ca. 65 nm.

10

15 Auf die organische Schicht (24) wird durch thermisches Verdampfen eine Schicht (25) aus LiAlF₄ mit einer Dicke von ca. 1 nm aufgebracht und darauf, ebenfalls durch thermisches Verdampfen, eine - als Top-Elektrode dienende - Schicht (26) aus Aluminium mit einer Dicke von ca. 150 nm. Die beiden
20 Schichten werden dabei entsprechend Beispiel 4 durch eine Maske mit streifenförmigen Öffnungen aufgedampft, so daß organische Leuchtdioden entstehen. Im Betrieb wird die ITO-Schicht positiv kontaktiert, die Top-Elektrode negativ.

25

In Tabelle 1 sind die Ergebnisse von Messungen an den OLEDs entsprechend den Beispielen 4 und 5 zusammengefaßt. Als charakteristische Kenndaten sind hierbei die Schwellenspannung (der Elektrolumineszenz), die Spannung und die Effizienz, jeweils bei einer Leuchtdichte von 1500 cd/m²,
30 die maximale Leuchtdichte und die Leuchtdichte bei einer Stromdichte von 50 mA/cm² aufgeführt.

Tabelle 1

Bei- spiel	Schwellen- spannung [V]	Spannung [V] bei 1500 cd/m ²	Effizienz [lm/W] bei 1500 cd/m ²	maximale Leucht- dichte [cd/m ²]	Leucht- dichte [cd/m ²] bei 50 mA/cm ²
4	2,08	14,48	0,677	15957	1544
5	1,87	14,12	0,720	18801	1605

Es zeigt sich, daß die Schwellen- und die Betriebsspannung des Displays nach der Erfindung (Beispiel 5) unterhalb der entsprechenden Werte beim herkömmlichen Display (Beispiel 4) liegen, obwohl die Dicke der LiAlF₄-Schicht nicht optimiert wurde. Die Werte für die Effizienz und die erzielten Leuchtdichten liegen beim Display nach der Erfindung oberhalb der entsprechenden Werte des herkömmlichen Displays.

In Figur 3 sind die Leuchtdichte/Spannung-Kennlinien der Displays nach den Beispielen 4 und 5 dargestellt. Aus dieser Darstellung ist die erhöhte Leuchtdichte des Displays nach der Erfindung klar ersichtlich.

Insgesamt ist folgendes festzustellen:

- Im Display nach der Erfindung (Beispiel 5) findet eine Kathode aus Aluminium Verwendung, mit der normalerweise Effizienzen erzielt werden, welche um ca. 40 bis 50 % unterhalb der entsprechenden Werte bei Mg/Ag-Kathoden (Beispiel 4) liegen. Aluminium ist andererseits aber gegenüber Umwelteinflüssen, wie Luftsauerstoff und Feuchtigkeit, stabiler als Magnesium.
- Durch das Einbringen einer dünnen LiAlF₄-Schicht zwischen die organischen Funktionsschichten und die Al-Kathode läßt sich aber die Effizienz von OLEDs mit einer Al-Kathode steigern, und zwar sogar über die entsprechenden Werte von OLEDs mit einer Mg/Ag-Kathode hinaus. Auf diese Weise kön-

nen hocheffiziente OLEDs mit stabiler Kathode aufgebaut werden.

Beispiel 6

5

Herstellung eines OLED-Displays mit einer Mg/Ag-Kathode

10

Auf ein Glas-Substrat wird eine ITO-Schicht mit einer Dicke von ca. 100 nm aufgebracht. Diese Schicht wird dann photolithographisch in der Weise strukturiert, daß eine streifenförmige Struktur entsteht. Auf das derart vorbehandelte beschichtete Substrat wird - durch thermisches Verdampfen - zunächst eine Schicht aus Naphdata mit einer Dicke von ca. 55 nm aufgebracht, dann eine Schicht aus α -NPD mit einer

15 Dicke von ca. 5 nm und schließlich eine Schicht aus Alq_3 mit einer Dicke von ca. 65 nm.

20

Auf die oberste organische Schicht (aus Alq_3) wird durch thermisches Verdampfen mittels zwei gleichzeitig betriebener Verdampferquellen eine Schicht aus einer Magnesium-Silber-Legierung (Mg:Ag-Mischungsverhältnis 10:1) mit einer Dicke von ca. 150 nm aufgebracht und darauf, ebenfalls durch thermisches Verdampfen, eine Schicht aus reinem Silber mit einer Dicke von ca. 150 nm. Die Metallschichten werden dabei

25 durch eine Maske mit streifenförmigen Öffnungen aufgedampft, so daß Kathodenstreifen entstehen, welche senkrecht zu den ITO-Streifen liegen. Jeweils an den Kreuzungspunkten der ITO-Bahnen mit den Metallbahnen entstehen auf diese Weise - zusammen mit den dazwischenliegenden organischen Schichten -

30 organische Leuchtdioden mit einer aktiven Fläche von $2 \times 2 \text{ mm}^2$. Im Betrieb wird die ITO-Schicht positiv kontaktiert, die Metallbahnen werden negativ kontaktiert.

Beispiel 7

Herstellung eines OLED-Displays mit einer Al-Kathode

- 5 Entsprechend Beispiel 6 wird ein Display mit drei organischen Funktionsschichten aufgebaut. Auf die oberste organische Schicht (aus Alq_3) wird dann durch thermisches Verdampfen - in entsprechender Weise - eine Schicht aus Aluminium mit einer Dicke von 150 nm aufgebracht.

10

Beispiel 8

Herstellung eines OLED-Displays mit einer Al-Kathode und einer LiF-Zwischenschicht

15

- Entsprechend Beispiel 6 wird ein Display mit drei organischen Funktionsschichten aufgebaut. Auf die oberste organische Schicht (aus Alq_3) wird dann durch thermisches Verdampfen eine Schicht aus LiF mit einer Dicke von ca. 0,5 nm auf-
20 gebracht und darauf, ebenfalls durch thermisches Verdampfen, eine Schicht aus Aluminium mit einer Dicke von ca. 150 nm. Die beiden Schichten werden dabei entsprechend Beispiel 6 durch eine Maske mit streifenförmigen Öffnungen aufgedampft, so daß organische Leuchtdioden entstehen. Im Betrieb wird die
25 ITO-Schicht positiv kontaktiert, die Al-Kathode negativ.

Beispiel 9

- Herstellung eines OLED-Displays mit einer Al-Kathode und
30 einer LiAlF_4 -Ladungsträgerinjektionsschicht

- Entsprechend Beispiel 8 wird ein Display mit drei organischen Funktionsschichten aufgebaut. Auf die oberste organische Schicht (aus Alq_3) wird dann durch thermisches Verdampfen
35 eine Schicht aus LiAlF_4 mit einer Dicke von ca. 0,5 nm aufgebracht und darauf, ebenfalls durch thermisches Verdampfen, eine - als Top-Elektrode dienende - Schicht aus Aluminium mit

einer Dicke von ca. 150 nm. Die Strukturierung und die Kontaktierung erfolgen entsprechend Beispiel 8.

Beispiel 10

5

Herstellung eines OLED-Displays mit einer Al-Kathode und einer LiAgF₂-Ladungsträgerinjektionsschicht

Entsprechend Beispiel 6 wird ein Display mit drei organischen Funktionsschichten aufgebaut. Auf die oberste organische Schicht (aus Alq₃) wird dann durch thermisches Verdampfen eine Schicht aus LiAgF₂ mit einer Dicke von ca. 0,5 nm aufgebracht und darauf, ebenfalls durch thermisches Verdampfen, eine - als Top-Elektrode dienende - Schicht aus Aluminium mit einer Dicke von ca. 150 nm. Die Strukturierung und die Kontaktierung erfolgen entsprechend Beispiel 8.

Beispiel 11

20 Herstellung eines OLED-Displays mit einer Al-Kathode und einer LiBaF₃-Ladungsträgerinjektionsschicht

Entsprechend Beispiel 6 wird ein Display mit drei organischen Funktionsschichten aufgebaut. Auf die oberste organische Schicht (aus Alq₃) wird dann durch thermisches Verdampfen eine Schicht aus LiBaF₃ mit einer Dicke von ca. 0,5 nm aufgebracht und darauf, ebenfalls durch thermisches Verdampfen, eine - als Top-Elektrode dienende - Schicht aus Aluminium mit einer Dicke von ca. 150 nm. Die Strukturierung und die Kontaktierung erfolgen entsprechend Beispiel 8.

In Tabelle 2 sind die Ergebnisse von Messungen an den OLEDs entsprechend den Beispielen 6 bis 11 zusammengefaßt. Als charakteristische Kenndaten sind hierbei die Schwellenspannung (der Elektrolumineszenz), die Spannung und die Effizienz, jeweils bei einer Leuchtdichte von 1500 cd/m²,

16

sowie die Leuchtdichte bei einer Stromdichte von 50 mA/cm² aufgeführt.

Tabelle 2

Bei- spiel	Schwellen- spannung [V]	Spannung [V] bei 1500 cd/m ²	Effizienz [lm/W] bei 1500 cd/m ²	Leuchtdichte [cd/m ²] bei 50 mA/cm ²
6	3,19	9,96	1,08	1722
7	7,15	16,52	0,48	1275
8	3,17	9,47	1,19	1809
9	4,23	11,97	0,88	1684
10	3,49	10,86	1,00	1745
11	2,56	9,58	1,26	1948

Es zeigt sich, daß die Schwellen- und die Betriebsspannungen der Displays nach der Erfindung (Beispiele 9 bis 11), die eine Al-Kathode und eine Ladungsträgerinjektionsschicht aus einem Metallkomplexsalz aufweisen, mit den Werten vergleichbar sind, die bei Displays mit einer Mg/Ag-Kathode bzw. mit einer Al-Kathode und einer LiF-Zwischenschicht (Beispiele 6 und 8) erhalten werden und deutlich unterhalb der entsprechenden Werte bei einem Display mit reiner Al-Kathode (Beispiel 7) liegen. Die Displays nach der Erfindung sind auch hinsichtlich der Effizienz und der Leuchtdichte mit den Mg/Ag- und Al-LiF-Displays vergleichbar, wobei insbesondere ein Display mit einer LiBaF₃-Ladungsträgerinjektionsschicht (Beispiel 11) hohe Werte zeigt.

In Figur 4 sind Effizienz/Leuchtdichte-Kennlinien der Displays nach den Beispielen 6 bis 11 dargestellt. Aus dieser Darstellung ist insbesondere die überragende Stellung eines Al-LiBaF₃-Displays nach der Erfindung klar ersichtlich.

Insgesamt ist festzustellen, daß sich durch das Einbringen dünner Schichten aus einem Metallkomplexsalz, wie LiAlF₄,

LiAgF₂ und LiBaF₃, zwischen die organischen Funktionsschichten und die Kathode die Effizienz von OLEDs mit einer Al-Kathode über die entsprechenden Werte von OLEDs mit einer Mg/Ag-Kathode hinaus steigern läßt. Auf diese Weise können
5 hocheffiziente OLEDs mit stabiler Kathode aufgebaut werden.

In Figur 5 sind die Werte für die Leuchtdichte (bei einer Stromdichte von 50 mA/cm²) der Materialien nach den Beispielen 6 bis 11 einander gegenübergestellt. Auch hieraus
10 ergeben sich die guten Ergebnisse, die sich mit den Displays nach der Erfindung erzielen lassen.

Patentansprüche

1. Organisches elektrolumineszierendes Bauteil, insbesondere
5 organische lichtemittierende Diode, g e k e n n z e i c h -
n e t durch
- eine auf einem Substrat (21) befindliche transparente
Bottom-Elektrode (22),
 - eine Top-Elektrode (26) aus einem gegen Sauerstoff und
10 Feuchtigkeit inerten Metall,
 - wenigstens eine zwischen der Bottom-Elektrode (22) und der
Top-Elektrode (26) angeordnete organische Funktionsschicht
(23, 24) und
 - eine ein Metallkomplexsalz der Zusammensetzung
15 $(Me_1)(Me_2)F_{m+n}$ enthaltende Ladungsträgerinjektionsschicht
(25), wobei folgendes gilt:
m und n sind jeweils eine ganze Zahl entsprechend der
Wertigkeit der Metalle Me_1 und Me_2 ,
 $Me_1 = Li, Na, K, Mg$ oder Ca ,
20 $Me_2 = Mg, Al, Ca, Zn, Ag, Sb, Ba, Sm$ oder Yb ,
mit der Maßgabe: $Me_1 \neq Me_2$.
2. Bauteil nach Anspruch 1, d a d u r c h g e k e n n -
z e i c h n e t , daß die Top-Elektrode (26) aus Aluminium,
25 Silber, Platin oder Gold besteht oder aus einer Legierung aus
zwei dieser Metalle.
3. Bauteil nach Anspruch 1 oder 2, d a d u r c h g e -
k e n n z e i c h n e t , daß die Ladungsträgerinjektions-
30 schicht (25) zwischen der Top-Elektrode (26) und der organi-
schen Funktionsschicht (24) angeordnet ist.
4. Bauteil nach einem der Ansprüche 1 bis 3, d a d u r c h
g e k e n n z e i c h n e t , daß die Ladungsträgerinjek-
35 tionsschicht (25) eine Dicke zwischen 0,1 und 20 nm aufweist.

5. Bauteil nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß das Metall Me₁ Lithium (Li) und/oder das Metall Me₂ Magnesium (Mg), Aluminium (Al), Calcium (Ca), Silber (Ag) oder Barium (Ba) ist.

6. Bauteil nach Anspruch 5, dadurch gekennzeichnet, daß das Metallkomplexsalz LiAlF₄, LiAgF₂ oder LiBaF₃ ist.

7. Bauteil nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, daß zwischen der Bottom-Elektrode (22) und der Top-Elektrode (26) zwei organische Funktionsschichten (23, 24) angeordnet sind, wobei sich auf der Bottom-Elektrode (22) eine Lochleitschicht (23) und auf dieser Schicht eine Emissionsschicht (24) befindet.

8. Bauteil nach Anspruch 7, dadurch gekennzeichnet, daß die Lochleitschicht (23) N,N'-Bis-(3-methylphenyl)-N,N'-bis-(phenyl)-benzidin, 4,4',4''-Tris-(N-1-naphthyl-N-phenyl-amino)-triphenylamin oder N,N'-Bis-phenyl-N,N'-bis- α -naphthyl-benzidin enthält und/oder die Emissionsschicht (24) Hydroxychinolin-Aluminium-III-salz.

9. Bauteil nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 8, dadurch gekennzeichnet, daß die Bottom-Elektrode (22) aus Indium-Zinn-Oxid besteht.

10. Bauteil nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 9, dadurch gekennzeichnet, daß auf der wenigstens einen organischen Funktionsschicht (23, 24) eine Elektronentransportschicht angeordnet ist.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

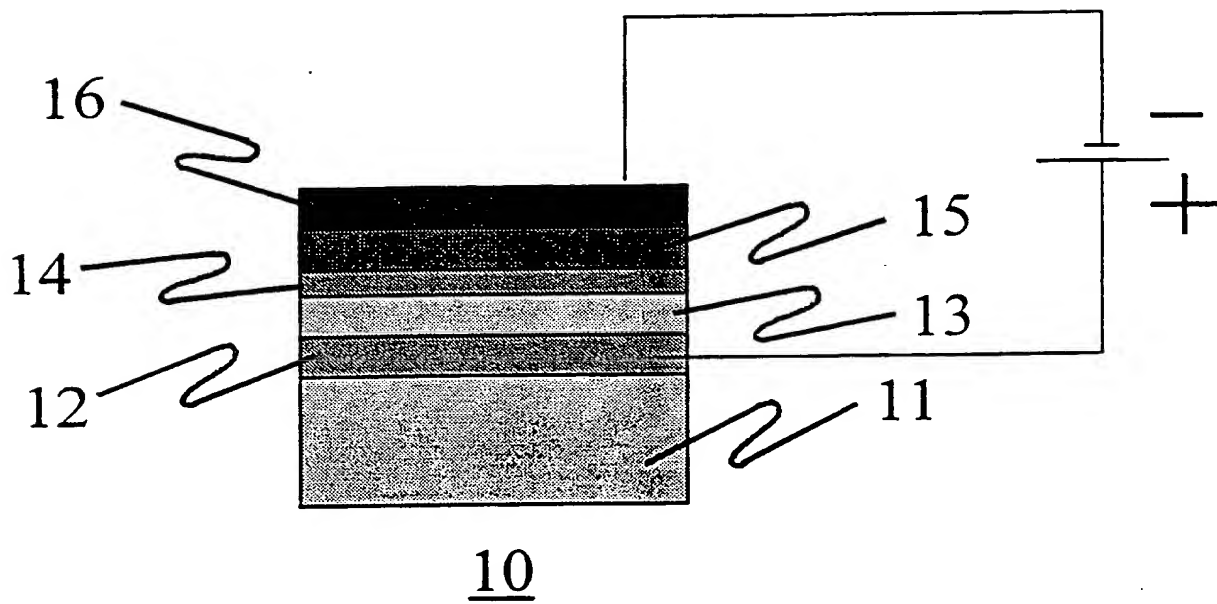


FIG 1

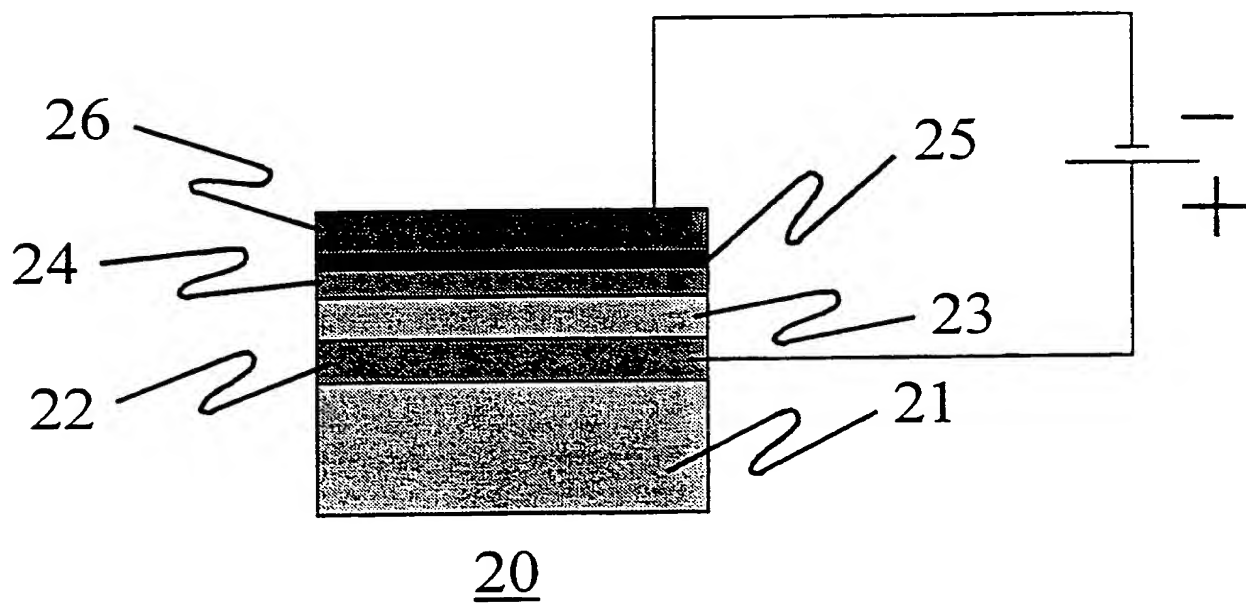


FIG 2

THIS PAGE BLANK (USPTO)

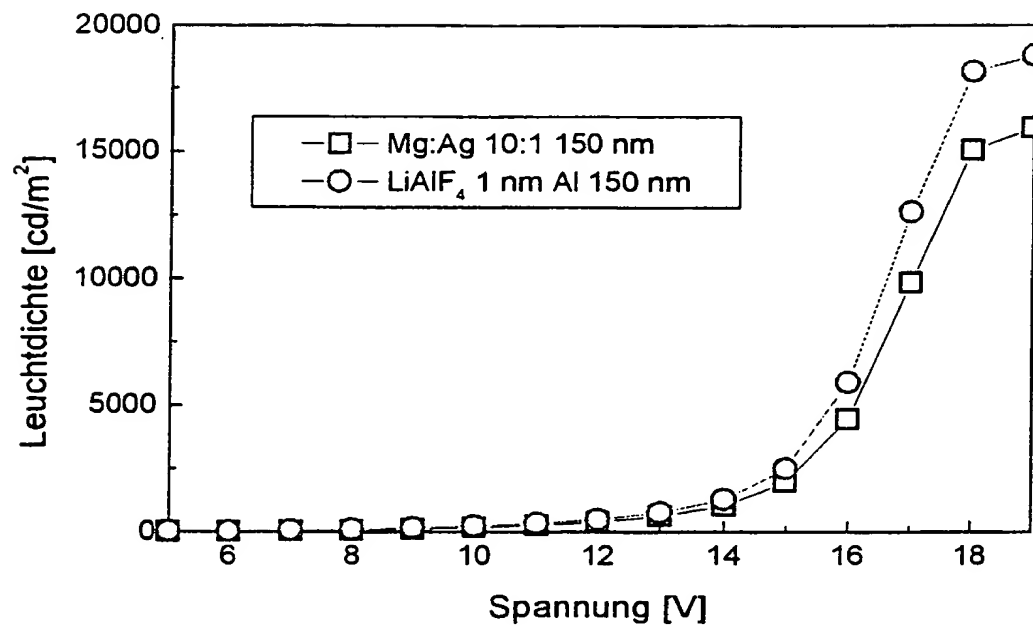


FIG 3

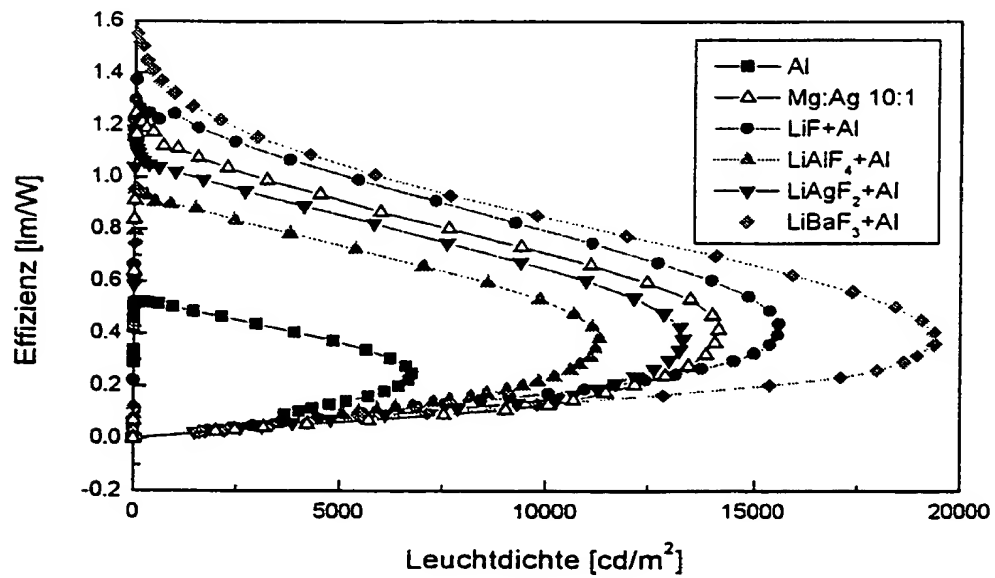


FIG 4

THIS PAGE BLANK (USPTO,

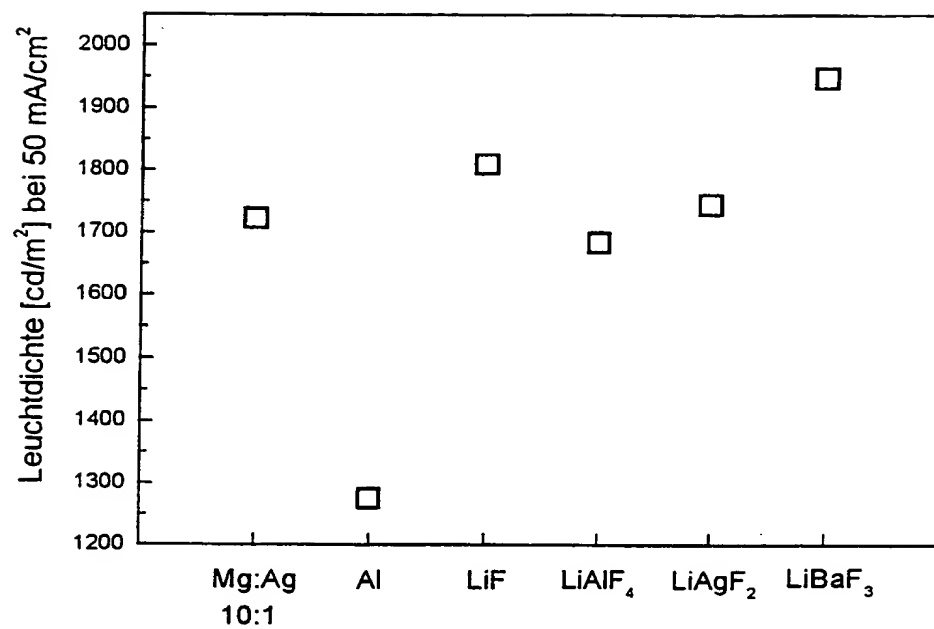


FIG 5

THIS PAGE BLANK (USPTO)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Int. J. Application No

PCT/DE 00/00783

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 7 H01L51/20

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 H01L

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal, INSPEC, PAJ

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	EP 0 869 701 A (MITSUBISHI CHEM CORP) 7 October 1998 (1998-10-07) the whole document	1-10

☐ Further documents are listed in the continuation of box C.

☒ Patent family members are listed in annex.

* Special categories of cited documents :

- *A* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- *E* earlier document but published on or after the international filing date
- *L* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- *O* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- *P* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- *T* later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- *X* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- *Y* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.
- *&* document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

19 July 2000

Date of mailing of the international search report

26/07/2000

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

van der Linden, J.E.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/DE 00/00783

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
EP 0869701 A	07-10-1998	JP 11026167 A	29-01-1999

INTERNATIONALE RECHERCHENBERICHT

Int. Nationales Aktenzeichen

PCT/DE 00/00783

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES

IPK 7 H01L51/20

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 7 H01L

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, INSPEC, PAJ

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	EP 0 869 701 A (MITSUBISHI CHEM CORP) 7. Oktober 1998 (1998-10-07) das ganze Dokument -----	1-10

☐ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

☒ Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

A Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

E älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

L Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

O Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

P Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

T Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

X Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

Y Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

& Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

19. Juli 2000

Absenddatum des internationalen Recherchenberichts

26/07/2000

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde

Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl.
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

van der Linden, J.E.

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/DE 00/00783

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
EP 0869701 A	07-10-1998	JP 11026167 A	29-01-1999

24-AUG-2001 15:30

PING HERRMAN FISCHER

9/937290 017

S.17

PCT/DE00/00783

P01,0300

GR 99 P 3169 P

3/prts

(A)

1

PCT

Beschreibung

Organisches elektrolumineszierendes Bauteil

- 5 Die Erfindung betrifft ein organisches elektrolumineszierendes Bauteil, insbesondere eine organische lichtemittierende Diode.

- 10 Wegen der starken Zunahme der Informationsmenge gewinnt die Visualisierung von Daten ständig an Bedeutung. Für den Einsatz in mobilen und tragbaren elektronischen Geräten wurde dazu die Technik der Flachbildschirme („Flat Panel Displays“) entwickelt. Der Markt der Flachbildschirme wird derzeit weitgehend von der Technologie der Flüssigkristall-Anzeigen
- 15 (LC-Displays) dominiert. Neben der kostengünstigen Herstellbarkeit, geringer elektrischer Leistungsaufnahme, kleinem Gewicht und geringem Platzbedarf weist die Technik der LC-Displays jedoch auch gravierende Nachteile auf.
- 20 LC-Displays sind nicht selbst-emittierend und daher nur bei besonders günstigen Umgebungslichtverhältnissen leicht abzulesen oder zu erkennen. Dies macht in den meisten Fällen eine Hinterleuchtungseinrichtung erforderlich, die aber die Dicke des Flachbildschirms vervielfacht. Außerdem wird dann
- 25 der Überwiegende Anteil der elektrischen Leistungsaufnahme für die Beleuchtung benötigt, und es ist eine höhere Spannung für den Betrieb der Lampen oder Leuchtstoffröhren erforderlich, die meistens mit Hilfe von „Voltage-up-Konvertern“ aus Batterien oder Akkumulatoren erzeugt wird. Weitere Nachteile
- 30 sind der stark eingeschränkte Betrachtungswinkel der LC-Displays und die langen Schaltzeiten einzelner Pixel, welche typischerweise bei einigen Millisekunden liegen und zudem stark temperaturabhängig sind. Der verzögerte Bildaufbau macht sich beispielsweise beim Einsatz in Verkehrsmitteln
- 35 oder bei Videoapplikationen äußerst störend bemerkbar.

1000 1-5 1000 1-5 1000 1-5 1000 1-5
02572919

THIS PAGE BLANK (USPTO)

24-AUG-2001 15:30

EPPING HERMANN FISCHER

S.18

GR 99 P 3169 P

2

Neben den LC-Displays gibt es noch weitere Flachbildschirm-technologien, beispielsweise die Technologie der Flachbildschirm-Kathodenstrahlröhren, der Vakuum-Fluoreszenzanzeigen und der anorganischen Dünnfilm-Elektrolumineszenzanzeigen.

- 5 Diese Technologien haben jedoch entweder noch nicht den erforderlichen technischen Reifegrad erreicht oder sie sind - aufgrund hoher Betriebsspannungen bzw. hoher Herstellungskosten - nur bedingt für den Einsatz in tragbaren elektronischen Geräten geeignet.

10

Anzeigen auf der Basis organischer Leuchtdioden („Organic Light Emitting Diodes“ = OLEDs) weisen die genannten Nachteile nicht auf. Aufgrund der Selbstemissivität entfällt die Notwendigkeit einer Hinterleuchtung, wodurch der Platzbedarf und die elektrische Leistungsaufnahme erheblich reduziert wird. Die Schaltzeiten liegen etwa bei einer Mikrosekunde und sind nur wenig temperaturabhängig, was den Einsatz für Videoapplikationen ermöglicht. Der Ablesewinkel beträgt nahezu 180°, und Polarisationsfolien, wie sie bei LC-Displays erforderlich sind, entfallen, so daß eine größere Helligkeit der Anzeigeelemente erzielbar ist. Weitere Vorteile sind die Verwendbarkeit flexibler und nicht-planarer Substrate sowie eine einfache und kostengünstige Herstellung.

15

20

25

Der Aufbau organischer Leuchtdioden erfolgt typischerweise folgendermaßen.

Ein transparentes Substrat, beispielsweise Glas, wird großflächig mit einer transparenten Elektrode (Bottom-Elektrode, Anode), beispielsweise aus Indium-Zinn-Oxid (ITO), beschichtet. Je nach Anwendung wird dann die transparente Elektrode - mit Hilfe eines photolithographischen Prozesses - strukturiert.

30

35

Auf das Substrat mit der strukturierten Elektrode werden eine oder mehrere organische Schichten, bestehend aus Polymeren, Oligomeren, niedermolekularen Verbindungen oder Mischungen

THIS PAGE BLANK (USPTO)

24-AUG-2001 15:31

EPPING HERMANN FISCHER

S.19

GR 99 P 3169 P

3

hiervon, aufgebracht. Beispiele für Polymere sind Polyanilin, Poly(p-phenylen-vinyl) und Poly(2-methoxy-5-(2'-ethyl)-hexyloxy-p-phenylen-vinyl). Beispiele für niedermolekulare, bevorzugt positive Ladungsträger transportierende Verbindungen sind N,N'-Bis-(3-methylphenyl)-N,N'-bis-(phenyl)-benzidin (m-TPD), 4,4',4''-Tris-(N-3-methylphenyl-N-phenyl-amino)-triphenylamin (m-MTDATA) und 4,4',4''-Tris-(carbazol-9-yl)-triphenylamin (TCTA). Als Emitter wird beispielsweise Hydroxychinolin-Aluminium-III-salz (Alq₃) verwendet, das mit geeigneten Chromophoren dotiert sein kann (Chinacridon-Derivate, aromatische Kohlenwasserstoffe usw.). Gegebenenfalls können zusätzliche Stoffe, welche die elektrooptischen und die Langzeiteigenschaften beeinflussen, wie Kupfer-Phthalocyanin, vorhanden sein. Das Aufbringen von Polymeren erfolgt meistens aus der flüssigen Phase durch Rakeln oder Spin-coating, niedermolekulare und oligomere Verbindungen werden meistens aus der Gasphase durch Aufdampfen oder „Physical Vapor Deposition“ (PVD) abgeschieden. Die Gesamtschichtdicke kann zwischen 10 nm und 10 µm betragen, typischerweise liegt sie im Bereich zwischen 50 und 200 nm.

Auf die organische(n) Schicht(en) wird eine Gegenelektrode (Top-Elektrode, Kathode) aufgebracht, welche üblicherweise aus einem Metall, aus einer Metall-Legierung oder aus einer dünnen Isolatorschicht und einer dicken Metallschicht besteht. Die Herstellung der Kathodenschicht erfolgt meistens mittels Gasphasenabscheidung durch thermisches Verdampfen, Elektronenstrahlverdampfen oder Sputtern.

Wenn als Kathodenmaterial Metalle verwendet werden, so müssen diese eine geringe Austrittsarbeit (typischerweise < 3,7 eV) besitzen, damit Elektronen effizient in den organischen Halbleiter injiziert werden können. Meistens werden hierzu Alkalimetalle, Erdalkalimetalle oder Seltenerdmetalle verwendet; die Schichtdicke liegt zwischen 0,2 nm und einigen hundert Nanometern, im allgemeinen jedoch bei einigen 10 Nanometern. Da diese unedlen Metalle unter Atmosphärenbedingungen jedoch

THIS PAGE BLANK (USPTO)

24-AUG-2001 15:31

EPPING HERMANN FISCHER

S.20

GR 99 P 3169 P

4

zu Korrosion neigen, ist es erforderlich, auf die Kathodenschicht zusätzlich noch eine Schicht eines edleren, inerteren Metalls, wie Aluminium (Al), Kupfer (Cu), Silber (Ag) oder Gold (Au) aufzubringen, welche die unedle Metallschicht vor Feuchtigkeit und Luftsauerstoff schützt.

Zur Erhöhung der Stabilität der Kathoden gegen eine korrosionsbedingte Defektbildung wird - anstelle eines reinen unedlen Metalls - häufig eine Legierung aus einem effizient elektroneninjizierenden, aber korrosionsanfälligen unedlen Metall (Austrittsarbeit $< 3,7$ eV) und einem korrosionsbeständigen edlen Metall, wie Al, Cu, Ag und Au, verwendet. Der Anteil des unedlen Metalls an der Legierung kann zwischen einigen Promille und etwa 90 % betragen. Die Legierungen werden meistens durch gleichzeitige Abscheidung der Metalle aus der Gasphase, beispielsweise durch Koverdampfen, gleichzeitiges Sputtern mit mehreren Quellen und Sputtern unter Verwendung von Legierungstargets erzeugt. Aber auch auf derartige Kathoden wird meistens zusätzlich noch eine Schicht aus einem edlen Metall, wie Al, Cu, Ag oder Au, als Korrosionsschutz aufgebracht.

Kathoden aus edlen Metallen, d.h. Metallen mit einer Austrittsarbeit $> 3,7$ eV, sind, wenn sie in direktem Kontakt zum organischen Halbleiter eingesetzt werden, sehr ineffiziente Elektroneninjektoren. Wird jedoch zwischen der obersten elektronenleitenden organischen Schicht und der Metallelektrode eine dünne isolierende Zwischenschicht (Schichtdicke im allgemeinen zwischen 0,2 und 5 nm) angeordnet, so steigt die Effizienz der Leuchtdioden erheblich. Als isolierendes Material für eine derartige Zwischenschicht kommen Oxide, wie Aluminiumoxid, Alkali- und Erdalkalioxide und andere Oxide, sowie Alkali- und Erdalkalifluoride in Frage (siehe dazu: Appl. Phys. Lett., Vol. 71 (1997), Seiten 2560 bis 2562; US-PS 5 677 572; EP-OS 0 822 603). Auf die dünne isolierende Zwischenschicht wird dann eine Metallelektrode aufgebracht, die aus einem reinen Metall oder einer Metall-Legierung

THIS PAGE BLANK (USPTO)

24-AUG-2001 15:31

EPPING HERMANN FISCHER

S.21

GR 99 P 3169 P

5

besteht. Das isolierende Material kann dabei auch zusammen mit dem Elektrodenmaterial durch Koverdampfen aufgebracht werden (Appl. Phys. Lett., Vol. 73 (1998), Seiten 1185 bis 1187).

5

Aufgabe der Erfindung ist es, ein organisches elektrolumineszierendes Bauteil, insbesondere eine organische lichtemittierende Diode, derart auszugestalten, daß einerseits auf eine hermetische Abdichtung der Top-Elektrode verzichtet werden kann und andererseits die Auswahl an auf der Kathodenseite einsetzbaren Materialien vergrößert wird.

Dies wird erfindungsgemäß durch ein Bauteil erreicht, das gekennzeichnet ist durch

- 15 - eine auf einem Substrat befindliche transparente Bottom-Elektrode,
- eine Top-Elektrode aus einem gegen Sauerstoff und Feuchtigkeit inerten Metall,
- wenigstens eine zwischen der Bottom-Elektrode und der
- 20 Top-Elektrode angeordnete organische Funktionsschicht und
- eine ein Metallkomplexsalz der Zusammensetzung $(Me_1)(Me_2)F_{m+n}$ enthaltende Ladungsträgerinjektionsschicht, wobei folgendes gilt:
- 25 m und n sind jeweils eine ganze Zahl entsprechend der Wertigkeit der Metalle Me_1 und Me_2 (das Metall Me_1 besitzt dabei die Wertigkeit m , das Metall Me_2 die Wertigkeit n),
 $Me_1 = Li, Na, K, Mg$ oder Ca ,
 $Me_2 = Mg, Al, Ca, Zn, Ag, Sb, Ba, Sm$ oder Yb ,
mit der Maßgabe: $Me_1 \neq Me_2$.

30

Das wesentliche Merkmal des organischen elektrolumineszierenden Bauteils nach der Erfindung besteht somit in einem spezifischen Aufbau auf der Kathodenseite, nämlich in der Kombination einer gegenüber Umwelteinflüssen indifferenten

35 Top-Elektrode mit einer Ladungsträgerinjektionsschicht aus einem speziellen Metallkomplexsalz der Zusammensetzung $(Me_1)(Me_2)F_{m+n}$, d.h. einem Doppelfluorid. Aufgrund dieses

THIS PAGE BLANK (USPTO)

GR 99 P 3169 P

6

Aufbaus kann eine hermetische Abdichtung bzw. Versiegelung der Top-Elektrode unterbleiben. Durch das spezielle Material für die Ladungsträgerinjektionsschicht wird nicht nur das Angebot für die auf der Kathodenseite einsetzbaren Materialien verbreitert, sondern durch dieses Material wird auch eine Verbesserung der Emissionseigenschaften erreicht, die in einer deutlich höheren Lichtausbeute, einer verringerten Betriebsspannung und einer längeren Lebensdauer im Betrieb zum Ausdruck kommt.

10

Die Ladungsträgerinjektionsschicht (aus einem speziellen Metallkomplexsalz) ist vorzugsweise als dünne Isolierschicht zwischen der Top-Elektrode und der organischen Funktionsschicht angeordnet, beim Vorhandensein mehrerer Funktionsschichten zwischen der obersten Funktionsschicht und der Top-Elektrode. Befindet sich beim Bauteil nach der Erfindung auf der (obersten) Funktionsschicht zusätzlich noch eine Elektronentransportschicht, so ist die Ladungsträgerinjektionsschicht zwischen dieser Schicht und der Top-Elektrode angeordnet. In allen diesen Fällen beträgt die Dicke der Ladungsträgerinjektionsschicht vorzugsweise etwa 0,1 bis 20 nm.

Die Ladungsträgerinjektionsschicht kann quasi aber auch in die Top-Elektrode, in die (oberste) organische Funktionsschicht oder in eine gegebenenfalls vorhandene Elektronentransportschicht integriert sein, d.h. das Metallkomplexsalz ist dann Bestandteil einer der genannten Schichten. Die Herstellung derartiger Schichten kann vorteilhaft durch Koverdampfen der entsprechenden Materialien erfolgen, beispielsweise durch Koverdampfen des Top-Elektrodenmaterials und des Metallkomplexsalzes.

Das Metallkomplexsalz weist die Zusammensetzung $(Me_1)(Me_2)F_{m+n}$ auf, wobei m und n der Wertigkeit des jeweiligen Metalls entsprechen. Für Me_1 gilt: m = 1 (Li, Na, K) oder m = 2 (Mg, Ca); für Me_2 gilt: n = 1 (Ag) oder n = 2 (Mg, Ca, Zn, Ba) oder n = 3 (Al, Sb, Sm, Yb). Das Metall Me_1 ist vor-

THIS PAGE BLANK (USPTO)

24-AUG-2001 15:32

EPPING HERMANN FISCHER

S.23

GR 99 P 3169 P

7

zugsweise Lithium (Li), das Metall Me₂ vorzugsweise Magnesium (Mg), Aluminium (Al), Calcium (Ca), Silber (Ag) oder Barium (Ba) -

- 5 Vorteilhaft wird als Metallkomplexsalz eines der Doppel-
fluoride LiAgF₂, LiBaF₃ und LiAlF₄ eingesetzt. Weitere
derartige Doppelfluoride sind beispielsweise NaAgF₂, KAgF₂,
LiMgF₃, LiCaF₃, CaAgF₃ und MgBaF₄. Komplexsalze dieser Art
sowie Verfahren zu deren Herstellung sind an sich bekannt
10 (siehe dazu die Ausführungsbeispiele sowie beispielsweise
„Gmelins Handbuch der Anorganischen Chemie“, 8. Auflage
(1926), System-Nummer 5 (Fluor), Seiten 58 bis 72).

- Die Top-Elektrode, die im allgemeinen eine Dicke > 100 nm
15 aufweist, besteht vorzugsweise aus einem der folgenden
Metalle: Aluminium (Al), Silber (Ag), Platin (Pt) und Gold
(Au). Das Elektrodenmaterial kann aber auch eine Legierung
aus zweien dieser Metalle sein. Als weitere Metalle für die
Top-Elektrode kommen Magnesium (Mg), Calcium (Ca), Zink (Zn),
20 Antimon (Sb) und Barium (Ba) in Betracht.

- Die Bottom-Elektrode besteht im allgemeinen aus Indium-Zinn-
Oxid (ITO). Weitere mögliche Materialien für die Bottom-
Elektrode sind Zinnoxid und Wismutoxid. Als Substrat für die
25 Bottom-Elektrode dient gewöhnlich Glas.

- Das Bauteil nach der Erfindung weist vorzugsweise zwei orga-
nische Funktionsschichten auf, nämlich eine an der Bottom-
Elektrode angeordnete Lochleitschicht, welche positive
30 Ladungsträger transportiert, und eine darauf befindliche
Emissionsschicht, die auch als Lumineszenzschicht bezeichnet
wird. Anstelle einer Lochleitschicht können vorteilhaft auch
zwei oder mehr Lochleitschichten eingesetzt werden.

- 35 Die Materialien für die genannten Schichten sind an sich be-
kannt. Für die Lochleitschicht(en) wird im vorliegenden Fall
vorzugsweise N,N'-Bis-(3-methylphenyl)-N,N'-bis-(phenyl)-

THIS PAGE BLANK (USPTO)

GR 99 P 3169 P

8

benzidin (m-TPD), 4,4',4''-Tris-(N-1-naphthyl-N-phenylamino)-
triphenylamin (Naphdata) oder N,N'-Bis-phenyl-N,N'-bis-
 α -naphthyl-benzidin (α -NPD) verwendet. Das Material für die
Emissionsschicht ist vorzugsweise Hydroxychinolin-Aluminium-
5 III-salz (Alq_3). Diese Verbindung kann gleichzeitig auch zum
Elektronentransport dienen. Für die Emissionsschicht kann
beispielsweise auch Chinacridon eingesetzt werden, für eine
gegebenenfalls vorhandene Elektronentransportschicht eines
der für diesen Zweck bekannten Oxadiazolderivate.

10

Insbesondere im Hinblick auf organische lichtemittierende
Dioden bietet die Erfindung die folgenden weiteren Vorteile:

- Erleichterte Handhabung

15 Aufgrund der Stabilität des Materials der Top-Elektrode muß
bei der Herstellung und Weiterverarbeitung von OLEDs nicht
unter einer Inertgasatmosphäre gearbeitet werden.

- Performance

Im Vergleich zu Top-Elektroden aus unedlen Metallen ist die
Betriebsspannung deutlich erniedrigt und die Lichtausbeute
20 und Effizienz erheblich gesteigert.

- Verbesserte Eigenschaften

Beispielsweise im Vergleich zu LiF als Material für die
Zwischenschicht haben Verbindungen wie LiAlF_4 den Vorteil,
daß sie weniger hygroskopisch sind, was die Handhabung und
25 Lagerung erleichtert. Die Doppelfluoride lassen sich auch
leichter verdampfen und sind weniger basisch (als LiF),
wodurch die Verträglichkeit mit den organischen Funktions-
schichten erhöht wird.

30 Anhand von Ausführungsbeispielen und Figuren soll die Erfin-
dung noch näher erläutert werden.

Es zeigt:

Figur 1 ein herkömmliches OLED-Display,

Figur 2 ein OLED-Display nach der Erfindung,

35 Figur 3 Leuchtdichte/Spannung-Kennlinien,

Figur 4 Effizienz/Leuchtdichte-Kennlinien,

THIS PAGE BLANK (USPTO)

GR 99 P 3169 P

9

Figur 5 eine Gegenüberstellung der Leuchtdichte verschiedener Materialien.

Beispiel 1

5

Herstellung von Lithiumaluminiumfluorid LiAlF_4

Lithiumaluminiumhydrid LiAlH_4 wird mit destilliertem Wasser vorsichtig hydrolysiert, anschließend wird mit Flußsäure (HF) im Überschuß umgesetzt. Das dabei ausfallende Metallkomplexsalz LiAlF_4 wird abgesaugt, mehrmals mit Wasser und Ethanol gewaschen und dann getrocknet.

Beispiel 2

15

Herstellung von Lithiumsilberfluorid LiAgF_2

Eine Lösung stöchiometrischer Mengen von Lithiumhydroxid und Silberacetat in Eisessig werden - unter Lichtausschluß - mit Flußsäure (HF) im Überschuß umgesetzt; dabei fällt das Metallkomplexsalz LiAgF_2 aus. Nach der Zugabe des gleichen Volumens Ethanol wird das Komplexsalz abgesaugt, mit Ethanol gewaschen und getrocknet.

Beispiel 3

Herstellung von Lithiumbariumfluorid LiBaF_3

Eine wäßrige Lösung stöchiometrischer Mengen von Lithiumhydroxid und Bariumhydroxid werden mit Flußsäure (HF) im Überschuß umgesetzt. Das Metallkomplexsalz LiBaF_3 fällt in der Kälte (Eiskühlung) aus; es wird abgesaugt, mehrmals mit Ethanol gewaschen und dann getrocknet.

In entsprechender Weise wird das Metallkomplexsalz LiCaF_3 hergestellt, wobei die Reaktionslösung erforderlichenfalls eingeeengt wird.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

GR 99 P 3169 P

10

Das Metallkomplexsalz LiMgF_3 kann in gleicher Weise hergestellt werden, als Ausgangsstoffe werden dabei Lithium-methylat und Magnesiummethylat eingesetzt.

5 Beispiel 4

Herstellung eines herkömmlichen OLED-Displays (10) mit einer Mg/Ag-Kathode (siehe Figur 1)

- 10 Auf ein Glas-Substrat (11) wird eine ITO-Schicht (12) mit einer Dicke von ca. 100 nm aufgebracht. Diese Schicht wird dann photolithographisch in der Weise strukturiert, daß eine streifenförmige Struktur entsteht. Auf das derart vorbehandelte beschichtete Substrat wird - durch thermisches Ver-
- 15 dampfen - zunächst eine Schicht aus m-TPD (13) mit einer Dicke von ca. 100 nm aufgebracht und dann eine Schicht (14) aus Alq_3 mit einer Dicke von ca. 65 nm.

- Auf die organische Schicht (14) wird durch thermisches Verdampfen mittels zwei gleichzeitig betriebener Verdampfer-
- 20 quellen eine Schicht (15) aus einer Magnesium-Silber-Legierung (Mg:Ag-Mischungsverhältnis 10:1) mit einer Dicke von ca. 150 nm aufgebracht und darauf, ebenfalls durch thermisches Verdampfen, eine Schicht (16) aus reinem Silber mit
- 25 einer Dicke von ca. 150 nm. Die Metallschichten werden dabei durch eine Maske mit streifenförmigen Öffnungen aufgedampft, so daß Kathodenstreifen entstehen, welche senkrecht zu den ITO-Streifen liegen. Jeweils an den Kreuzungspunkten der ITO-Bahnen mit den Metallbahnen entstehen auf diese Weise -
- 30 zusammen mit den dazwischenliegenden organischen Schichten - organische Leuchtdioden mit einer aktiven Fläche von $2 \times 2 \text{ mm}^2$. Im Betrieb wird die ITO-Schicht positiv kontaktiert, die Metallbahnen werden negativ kontaktiert.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

GR 99 P 3169 P

11

Beispiel 5

Herstellung eines OLED-Displays (20) nach der Erfindung
(siehe Figur 2)

5

Auf ein Glas-Substrat (21) wird eine ITO-Schicht (22) mit einer Dicke von ca. 100 nm aufgebracht. Diese Schicht wird dann photolithographisch in der Weise strukturiert, daß eine streifenförmige Struktur entsteht. Auf das derart vorbehandelte beschichtete Substrat wird - durch thermisches Verdampfen - zunächst eine Schicht aus m-TPD (23) mit einer Dicke von ca. 100 nm aufgebracht und dann eine Schicht (24) aus Alq₃ mit einer Dicke von ca. 65 nm.

15 Auf die organische Schicht (24) wird durch thermisches Verdampfen eine Schicht (25) aus LiAlF₄ mit einer Dicke von ca. 1 nm aufgebracht und darauf, ebenfalls durch thermisches Verdampfen, eine - als Top-Elektrode dienende - Schicht (26) aus Aluminium mit einer Dicke von ca. 150 nm. Die beiden
20 Schichten werden dabei entsprechend Beispiel 4 durch eine Maske mit streifenförmigen Öffnungen aufgedampft, so daß organische Leuchtdioden entstehen. Im Betrieb wird die ITO-Schicht positiv kontaktiert, die Top-Elektrode negativ.

25 In Tabelle 1 sind die Ergebnisse von Messungen an den OLEDs entsprechend den Beispielen 4 und 5 zusammengefaßt. Als charakteristische Kenndaten sind hierbei die Schwellenspannung (der Elektrolumineszenz), die Spannung und die Effizienz, jeweils bei einer Leuchtdichte von 1500 cd/m²,
30 die maximale Leuchtdichte und die Leuchtdichte bei einer Stromdichte von 50 mA/cm² aufgeführt.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

GR 99 P 3169 P

12

Tabelle 1

Bei- spiel	Schwellen- spannung [V]	Spannung [V] bei 1500 cd/m ²	Effizienz [lm/W] bei 1500 cd/m ²	maximale Leucht- dichte [cd/m ²]	Leucht- dichte [cd/m ²] bei 50 mA/cm ²
4	2,08	14,48	0,677	15957	1544
5	1,87	14,12	0,720	18801	1605

Es zeigt sich, daß die Schwellen- und die Betriebsspannung
 5 des Displays nach der Erfindung (Beispiel 5) unterhalb der
 entsprechenden Werte beim herkömmlichen Display (Beispiel 4)
 liegen, obwohl die Dicke der LiAlF₄-Schicht nicht optimiert
 wurde. Die Werte für die Effizienz und die erzielten Leucht-
 10 dichten liegen beim Display nach der Erfindung oberhalb der
 entsprechenden Werte des herkömmlichen Displays.

In Figur 3 sind die Leuchtdichte/Spannung-Kennlinien der
 Displays nach den Beispielen 4 und 5 dargestellt. Aus dieser
 Darstellung ist die erhöhte Leuchtdichte des Displays nach
 15 der Erfindung klar ersichtlich.

Insgesamt ist folgendes festzustellen:

- Im Display nach der Erfindung (Beispiel 5) findet eine
 Kathode aus Aluminium Verwendung, mit der normalerweise
 20 Effizienzen erzielt werden, welche um ca. 40 bis 50 %
 unterhalb der entsprechenden Werte bei Mg/Ag-Kathoden
 (Beispiel 4) liegen. Aluminium ist andererseits aber gegen-
 über Umwelteinflüssen, wie Luftsauerstoff und Feuchtigkeit,
 stabiler als Magnesium.
- 25 - Durch das Einbringen einer dünnen LiAlF₄-Schicht zwischen
 die organischen Funktionsschichten und die Al-Kathode läßt
 sich aber die Effizienz von OLEDs mit einer Al-Kathode
 steigern, und zwar sogar über die entsprechenden Werte von
 OLEDs mit einer Mg/Ag-Kathode hinaus. Auf diese Weise kön-

THIS PAGE BLANK (USPTO)

CR 99 P 3169 P

13

nen hocheffiziente OLEDs mit stabiler Kathode aufgebaut werden.

Beispiel 6

5

Herstellung eines OLED-Displays mit einer Mg/Ag-Kathode

Auf ein Glas-Substrat wird eine ITO-Schicht mit einer Dicke von ca. 100 nm aufgebracht. Diese Schicht wird dann photo-
10 lithographisch in der Weise strukturiert, daß eine streifenförmige Struktur entsteht. Auf das derart vorbehandelte beschichtete Substrat wird - durch thermisches Verdampfen - zunächst eine Schicht aus Naphdata mit einer Dicke von ca. 55 nm aufgebracht, dann eine Schicht aus α -NPD mit einer
15 Dicke von ca. 5 nm und schließlich eine Schicht aus Alq_3 mit einer Dicke von ca. 65 nm.

Auf die oberste organische Schicht (aus Alq_3) wird durch thermisches Verdampfen mittels zwei gleichzeitig betriebener
20 Verdampferquellen eine Schicht aus einer Magnesium-Silber-Legierung (Mg:Ag-Mischungsverhältnis 10:1) mit einer Dicke von ca. 150 nm aufgebracht und darauf, ebenfalls durch thermisches Verdampfen, eine Schicht aus reinem Silber mit einer Dicke von ca. 150 nm. Die Metallschichten werden dabei
25 durch eine Maske mit streifenförmigen Öffnungen aufgedampft, so daß Kathodenstreifen entstehen, welche senkrecht zu den ITO-Streifen liegen. Jeweils an den Kreuzungspunkten der ITO-Bahnen mit den Metallbahnen entstehen auf diese Weise - zusammen mit den dazwischenliegenden organischen Schichten -
30 organische Leuchtdioden mit einer aktiven Fläche von $2 \times 2 \text{ mm}^2$. Im Betrieb wird die ITO-Schicht positiv kontaktiert, die Metallbahnen werden negativ kontaktiert.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

CR 99 P 3169 P

14

Beispiel 7

Herstellung eines OLED-Displays mit einer Al-Kathode

- 5 Entsprechend Beispiel 6 wird ein Display mit drei organischen Funktionsschichten aufgebaut. Auf die oberste organische Schicht (aus Alq₃) wird dann durch thermisches Verdampfen - in entsprechender Weise - eine Schicht aus Aluminium mit einer Dicke von 150 nm aufgebracht.

10

Beispiel 8

Herstellung eines OLED-Displays mit einer Al-Kathode und einer LiF-Zwischenschicht

15

- Entsprechend Beispiel 6 wird ein Display mit drei organischen Funktionsschichten aufgebaut. Auf die oberste organische Schicht (aus Alq₃) wird dann durch thermisches Verdampfen eine Schicht aus LiF mit einer Dicke von ca. 0,5 nm auf-
20 gebracht und darauf, ebenfalls durch thermisches Verdampfen, eine Schicht aus Aluminium mit einer Dicke von ca. 150 nm. Die beiden Schichten werden dabei entsprechend Beispiel 6 durch eine Maske mit streifenförmigen Öffnungen aufgedampft, so daß organische Leuchtdioden entstehen. Im Betrieb wird die
25 ITO-Schicht positiv kontaktiert, die Al-Kathode negativ.

Beispiel 9

- Herstellung eines OLED-Displays mit einer Al-Kathode und
30 einer LiAlF₄-Ladungsträgerinjektionsschicht

- Entsprechend Beispiel 8 wird ein Display mit drei organischen Funktionsschichten aufgebaut. Auf die oberste organische Schicht (aus Alq₃) wird dann durch thermisches Verdampfen
35 eine Schicht aus LiAlF₄ mit einer Dicke von ca. 0,5 nm aufgebracht und darauf, ebenfalls durch thermisches Verdampfen, eine - als Top-Elektrode dienende - Schicht aus Aluminium mit

THIS PAGE BLANK (USPTO)

GR 99 P 3169 P

15

einer Dicke von ca. 150 nm. Die Strukturierung und die Kontaktierung erfolgen entsprechend Beispiel 8.

Beispiel 10

5

Herstellung eines OLED-Displays mit einer Al-Kathode und einer LiAgF₂-Ladungsträgerinjektionsschicht

Entsprechend Beispiel 6 wird ein Display mit drei organischen Funktionsschichten aufgebaut. Auf die oberste organische Schicht (aus Alq₃) wird dann durch thermisches Verdampfen eine Schicht aus LiAgF₂ mit einer Dicke von ca. 0,5 nm aufgebracht und darauf, ebenfalls durch thermisches Verdampfen, eine - als Top-Elektrode dienende - Schicht aus Aluminium mit einer Dicke von ca. 150 nm. Die Strukturierung und die Kontaktierung erfolgen entsprechend Beispiel 8.

Beispiel 11

Herstellung eines OLED-Displays mit einer Al-Kathode und einer LiBaF₃-Ladungsträgerinjektionsschicht

Entsprechend Beispiel 6 wird ein Display mit drei organischen Funktionsschichten aufgebaut. Auf die oberste organische Schicht (aus Alq₃) wird dann durch thermisches Verdampfen eine Schicht aus LiBaF₃ mit einer Dicke von ca. 0,5 nm aufgebracht und darauf, ebenfalls durch thermisches Verdampfen, eine - als Top-Elektrode dienende - Schicht aus Aluminium mit einer Dicke von ca. 150 nm. Die Strukturierung und die Kontaktierung erfolgen entsprechend Beispiel 8.

In Tabelle 2 sind die Ergebnisse von Messungen an den OLEDs entsprechend den Beispielen 6 bis 11 zusammengefaßt. Als charakteristische Kenndaten sind hierbei die Schwellenspannung (der Elektrolumineszenz), die Spannung und die Effizienz, jeweils bei einer Leuchtdichte von 1500 cd/m²,

THIS PAGE BLANK (USPTO)

GR 99 P 3169 P

16

sowie die Leuchtdichte bei einer Stromdichte von 50 mA/cm² aufgeführt.

Tabelle 2

5

Bei- spiel	Schwellen- spannung [V]	Spannung [V] bei 1500 cd/m ²	Effizienz [lm/W] bei 1500 cd/m ²	Leuchtdichte [cd/m ²] bei 50 mA/cm ²
6	3,19	9,96	1,08	1722
7	7,15	16,52	0,48	1275
8	3,17	9,47	1,19	1809
9	4,23	11,97	0,88	1684
10	3,49	10,86	1,00	1745
11	2,56	9,58	1,26	1948

Es zeigt sich, daß die Schwellen- und die Betriebsspannungen der Displays nach der Erfindung (Beispiele 9 bis 11), die eine Al-Kathode und eine Ladungsträgerinjektionsschicht aus einem Metallkomplexsalz aufweisen, mit den Werten vergleichbar sind, die bei Displays mit einer Mg/Ag-Kathode bzw. mit einer Al-Kathode und einer LiF-Zwischenschicht (Beispiele 6 und 8) erhalten werden und deutlich unterhalb der entsprechenden Werte bei einem Display mit reiner Al-Kathode (Beispiel 7) liegen. Die Displays nach der Erfindung sind auch hinsichtlich der Effizienz und der Leuchtdichte mit den Mg/Ag- und Al-LiF-Displays vergleichbar, wobei insbesondere ein Display mit einer LiBaF₃-Ladungsträgerinjektionsschicht (Beispiel 11) hohe Werte zeigt.

20

In Figur 4 sind Effizienz/Leuchtdichte-Kennlinien der Displays nach den Beispielen 6 bis 11 dargestellt. Aus dieser Darstellung ist insbesondere die überragende Stellung eines Al-LiBaF₃-Displays nach der Erfindung klar ersichtlich.

25

Insgesamt ist festzustellen, daß sich durch das Einbringen dünner Schichten aus einem Metallkomplexsalz, wie LiAlF₄,

THIS PAGE BLANK (USPTO)

GR 99 P 3169 P

17

LiAgF₂ und LiBaF₃, zwischen die organischen Funktionsschichten und die Kathode die Effizienz von OLEDs mit einer Al-Kathode über die entsprechenden Werte von OLEDs mit einer Mg/Ag-Kathode hinaus steigern läßt. Auf diese Weise können
5 hocheffiziente OLEDs mit stabiler Kathode aufgebaut werden.

In Figur 5 sind die Werte für die Leuchtdichte (bei einer Stromdichte von 50 mA/cm²) der Materialien nach den Beispielen 6 bis 11 einander gegenübergestellt. Auch hieraus
10 ergeben sich die guten Ergebnisse, die sich mit den Displays nach der Erfindung erzielen lassen.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

Patentansprüche

1. Organisches elektrolumineszierendes Bauteil, insbesondere
5 organische lichtemittierende Diode, g e k e n n z e i c h -
n e t durch
- eine auf einem Substrat (21) befindliche transparente
Bottom-Elektrode (22),
 - eine Top-Elektrode (26) aus einem gegen Sauerstoff und
10 Feuchtigkeit inerten Metall,
 - wenigstens eine zwischen der Bottom-Elektrode (22) und der
Top-Elektrode (26) angeordnete organische Funktionsschicht
(23, 24) und
 - eine ein Metallkomplexsalz der Zusammensetzung
15 $(Me_1)(Me_2)F_{m+n}$ enthaltende Ladungsträgerinjektionsschicht
(25), wobei folgendes gilt:
m und n sind jeweils eine ganze Zahl entsprechend der
Wertigkeit der Metalle Me_1 und Me_2 ,
 $Me_1 = Li, Na, K, Mg$ oder Ca ,
20 $Me_2 = Mg, Al, Ca, Zn, Ag, Sb, Ba, Sm$ oder Yb ,
mit der Maßgabe: $Me_1 \neq Me_2$.
2. Bauteil nach Anspruch 1, d a d u r c h g e k e n n -
z e i c h n e t , daß die Top-Elektrode (26) aus Aluminium,
25 Silber, Platin oder Gold besteht oder aus einer Legierung aus
zwei dieser Metalle.
3. Bauteil nach Anspruch 1 oder 2, d a d u r c h g e -
k e n n z e i c h n e t , daß die Ladungsträgerinjektions-
30 schicht (25) zwischen der Top-Elektrode (26) und der organi-
schen Funktionsschicht (24) angeordnet ist.
4. Bauteil nach einem der Ansprüche 1 bis 3, d a d u r c h
g e k e n n z e i c h n e t , daß die Ladungsträgerinjek-
35 tionsschicht (25) eine Dicke zwischen 0,1 und 20 nm aufweist.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

GR 99 P 3169 P

19

5. Bauteil nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß das Metall Me1 Lithium (Li) und/oder das Metall Me2 Magnesium (Mg), Aluminium (Al), Calcium (Ca), Silber (Ag) oder Barium (Ba) ist.

6. Bauteil nach Anspruch 5, dadurch gekennzeichnet, daß das Metallkomplexsalz LiAlF_4 , LiAgF_2 oder LiBaF_3 ist.

10

7. Bauteil nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, daß zwischen der Bottom-Elektrode (22) und der Top-Elektrode (26) zwei organische Funktionsschichten (23, 24) angeordnet sind, wobei sich auf der Bottom-Elektrode (22) eine Lochleitschicht (23) und auf dieser Schicht eine Emissionsschicht (24) befindet.

15

8. Bauteil nach Anspruch 7, dadurch gekennzeichnet, daß die Lochleitschicht (23) N,N'-Bis-(3-methylphenyl)-N,N'-bis-(phenyl)-benzidin, 4,4',4''-Tris-(N-1-naphthyl-N-phenyl-amino)-triphenylamin oder N,N'-Bis-phenyl-N,N'-bis- α -naphthyl-benzidin enthält und/oder die Emissionsschicht (24) Hydroxychinolin-Aluminium-III-salz.

20

9. Bauteil nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 8, dadurch gekennzeichnet, daß die Bottom-Elektrode (22) aus Indium-Zinn-Oxid besteht.

25

10. Bauteil nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 9, dadurch gekennzeichnet, daß auf der wenigstens einen organischen Funktionsschicht (23, 24) eine Elektronentransportschicht angeordnet ist.

30

THIS PAGE BLANK (USPTO)

24-AUG-2001 15:36

EPG HERMANN FISCHER

S.36

GR 99 P 3169 P

20

Zusammenfassung

Organisches elektrolumineszierendes Bauteil

- 5 Das organische elektrolumineszierende Bauteil nach der Erfindung weist folgende Bestandteile auf:
- eine auf einem Substrat (21) befindliche transparente Bottom-Elektrode (22),
 - eine Top-Elektrode (26) aus einem gegen Sauerstoff und Feuchtigkeit inerten Metall,
 - 10 - wenigstens eine zwischen der Bottom-Elektrode (22) und der Top-Elektrode (26) angeordnete organische Funktionsschicht (23, 24) und
 - eine ein Metallkomplexsalz der Zusammensetzung
 - 15 $(Me_1)(Me_2)F_{m+n}$ enthaltende Ladungsträgerinjektionsschicht (25), wobei folgendes gilt:
m und n sind jeweils eine ganze Zahl entsprechend der Wertigkeit der Metalle Me_1 und Me_2 ,
 $Me_1 = Li, Na, K, Mg$ oder Ca ,
 - 20 $Me_2 = Mg, Al, Ca, Zn, Ag, Sb, Ba, Sm$ oder Yb ,
mit der Maßgabe: $Me_1 \neq Me_2$.

FIG 2

THIS PAGE BLANK (USPTO)

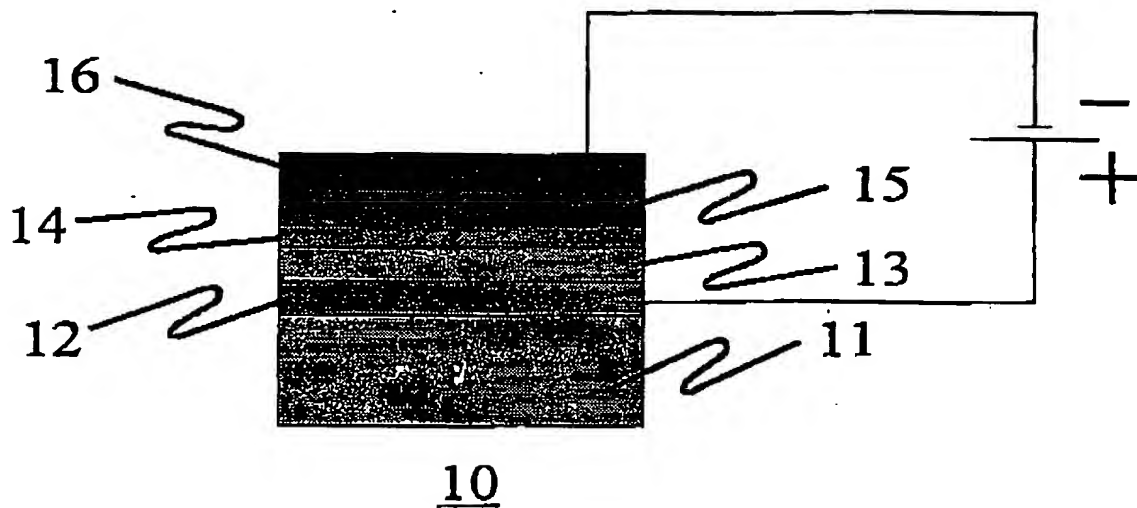


FIG 1

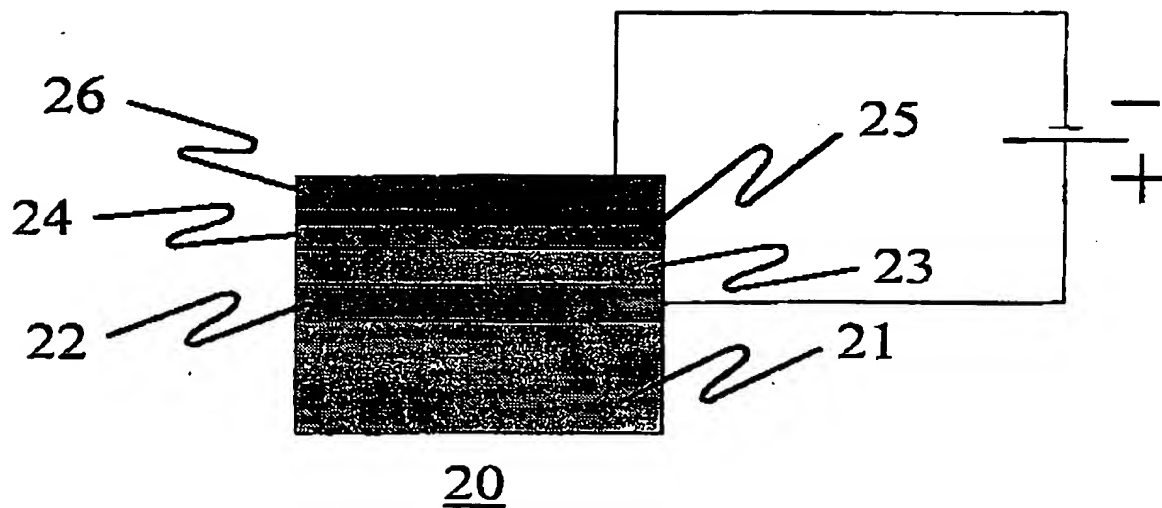


FIG 2

0000000000

JC16 Rec'd PCT/PTO SEP 24 2001

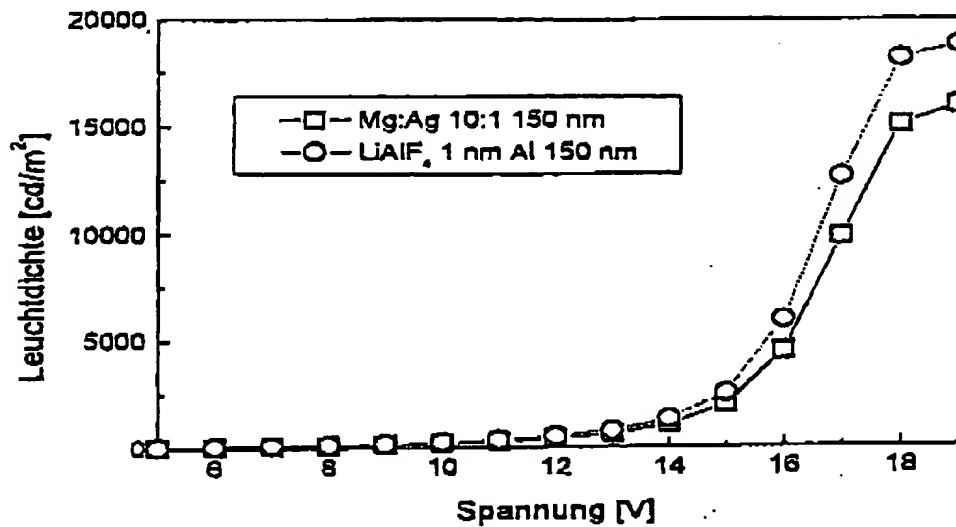


FIG 3

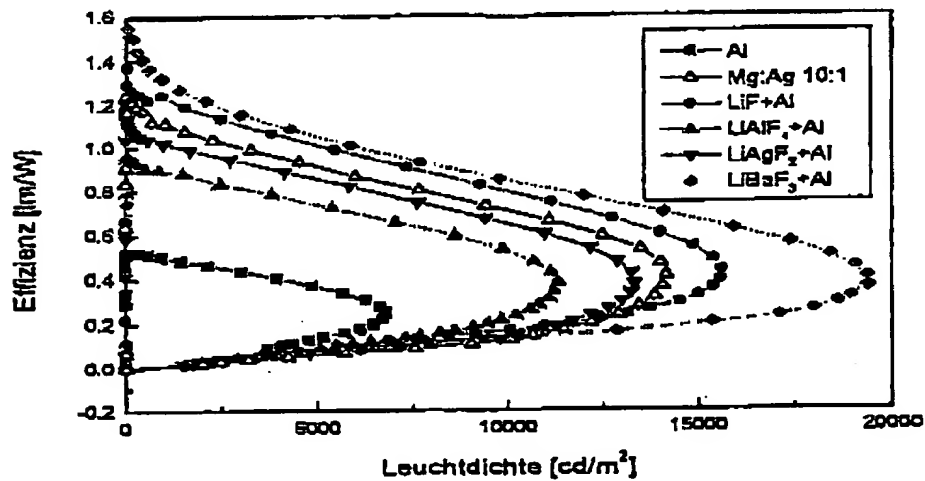


FIG 4

16 Rec'd PCT/PTO SEP 24 2001

GR 99 P 3169

3/3

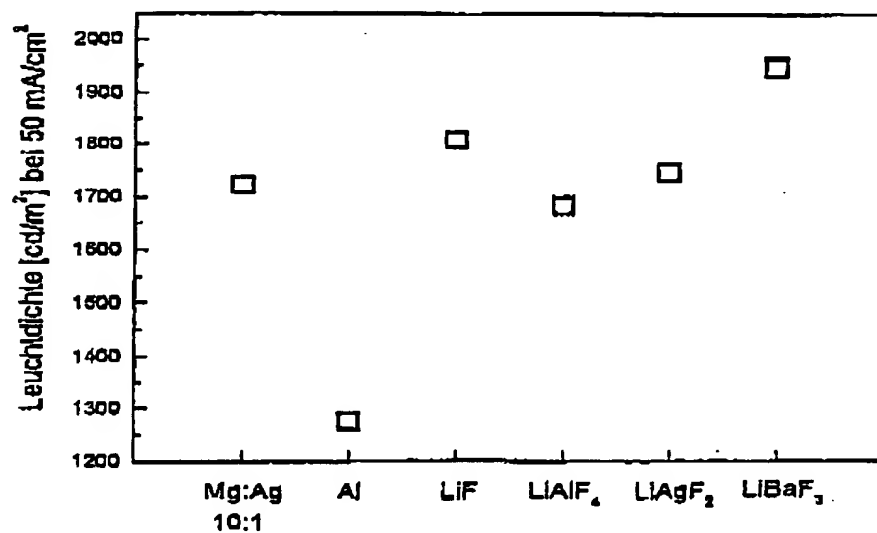


FIG 5

100-1-1-1-1-1

100-1-1-1-1-1
C16 Rec'd PCT/PTO SEP 24 2001

Translation
09/937290

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

6
RECEIVED
FEB 14 2001
IPC 2800
PCT/IPC 1000

Applicant's or agent's file reference 99P3169P	FOR FURTHER ACTION See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)	
International application No. PCT/DE00/00783	International filing date (day/month/year) 13 March 2000 (13.03.00)	Priority date (day/month/year) 24 March 1999 (24.03.99)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC H01L 51/20		
Applicant OSRAM OPTO SEMICONDUCTORS GMBH & CO. OHG		

1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.	
2. This REPORT consists of a total of <u>4</u> sheets, including this cover sheet.	
<input type="checkbox"/> This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).	
These annexes consist of a total of _____ sheets.	
3. This report contains indications relating to the following items:	
I <input checked="" type="checkbox"/>	Basis of the report
II <input type="checkbox"/>	Priority
III <input type="checkbox"/>	Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability
IV <input type="checkbox"/>	Lack of unity of invention
V <input checked="" type="checkbox"/>	Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement
VI <input type="checkbox"/>	Certain documents cited
VII <input checked="" type="checkbox"/>	Certain defects in the international application
VIII <input type="checkbox"/>	Certain observations on the international application

Date of submission of the demand 24 October 2000 (24.10.00)	Date of completion of this report 18 April 2001 (18.04.2001)
Name and mailing address of the IPEA/EP	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/DE00/00783

I. Basis of the report

1. This report has been drawn on the basis of *(Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to the report since they do not contain amendments.)*:

- ☐ the international application as originally filed.
- ☒ the description, pages 1-17, as originally filed,
 pages _____, filed with the demand,
 pages _____, filed with the letter of _____,
 pages _____, filed with the letter of _____.
- ☒ the claims, Nos. 1-10, as originally filed,
 Nos. _____, as amended under Article 19,
 Nos. _____, filed with the demand,
 Nos. _____, filed with the letter of _____,
 Nos. _____, filed with the letter of _____.
- ☒ the drawings, sheets/fig 1/3-3/3, as originally filed,
 sheets/fig _____, filed with the demand,
 sheets/fig _____, filed with the letter of _____,
 sheets/fig _____, filed with the letter of _____.

2. The amendments have resulted in the cancellation of:

- ☐ the description, pages _____
- ☐ the claims, Nos. _____
- ☐ the drawings, sheets/fig _____

3. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).

4. Additional observations, if necessary:

THIS PAGE BLANK (USPTO)

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/DE 00/00783

V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement**1. Statement**

Novelty (N)	Claims		YES
	Claims	1-5, 7-10	NO
Inventive step (IS)	Claims		YES
	Claims	6	NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-10	YES
	Claims		NO

2. Citations and explanations**1. Reference is made to the following document:**

D1: EP-A-0 869 701 (MITSUBISHI CHEM CORP) 7 October 1998 (1998-10-07)

2. The component described in Claims 1-5 and 7-10 is not novel with respect to D1 (see the entire document, in particular Fig. 2, column 2, line 20 – column 11, line 53) (PCT Art. 33(2)).

D1 discloses an organic LED consisting of a glass substrate (1), an ITO anode bottom electrode (2), a hole transport layer (3a), an emission layer (3b), an Al-top cathode electrode (5) and a 0.2 to 20 nm thick charge carrier injection layer (4) made of e.g. Li_3AlF_6 (column 11, line 21).

3. The subject matter of Claim 6 is suggested by the list of materials in column 11, lines 13-50 in D1 (PCT Art. 33(3)).

THIS PAGE BLANK (USPTO)

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.
PCT/DE 00/00783

VII. Certain defects in the international application

The following defects in the form or contents of the international application have been noted:

Contrary to PCT Rule 5.1(a)(ii), the description does not cite document D1 or indicate the relevant prior art disclosed therein.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

PCT

REC'D 20 APR 2001

WIPO PCT

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

(Artikel 36 und Regel 70 PCT)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts 1999 P 3169 P/GS	WEITERES VORGEHEN siehe Mitteilung über die Übersendung des internationalen vorläufigen Prüfungsberichts (Formblatt PCT/IPEA/416)	
Internationales Aktenzeichen PCT/DE00/00783	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 13/03/2000	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Tag) 24/03/1999
Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK H01L51/20		
Anmelder SIEMENS AKTIENGESELLSCHAFT et al.		


✓ 00/57493
24/08/01

- Dieser internationale vorläufige Prüfungsbericht wurde von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt.
- Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 4 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.
 - ☐ Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; dabei handelt es sich um Blätter mit Beschreibungen, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit vor dieser Behörde vorgenommenen Berichtigungen (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsrichtlinien zum PCT).

Diese Anlagen umfassen insgesamt Blätter.

3. Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:

- I ☒ Grundlage des Berichts
- II ☐ Priorität
- III ☐ Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit
- IV ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung
- V ☒ Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung
- VI ☐ Bestimmte angeführte Unterlagen
- VII ☒ Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung
- VIII ☐ Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Datum der Einreichung des Antrags 24/10/2000	Datum der Fertigstellung dieses Berichts 18.04.2001
Name und Postanschrift der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde:  Europäisches Patentamt D-80298 München Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d Fax: +49 89 2399 - 4465	Bevollmächtigter Bediensteter Werner, A Tel. Nr. +49 89 2399 2272



THIS PAGE BLANK (USPTO)

I. Grundlage des Berichts

1. Hinsichtlich der **B standteile** der internationalen Anmeldung (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigefügt, weil sie keine Änderungen enthalten (Regeln 70.16 und 70.17)*):
Beschreibung, Seiten:

1-17 ursprüngliche Fassung

Patentansprüche, Nr.:

1-10 ursprüngliche Fassung

Zeichnungen, Blätter:

1/3-3/3 ursprüngliche Fassung

2. Hinsichtlich der **Sprache**: Alle vorstehend genannten Bestandteile standen der Behörde in der Sprache, in der die internationale Anmeldung eingereicht worden ist, zur Verfügung oder wurden in dieser eingereicht, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

Die Bestandteile standen der Behörde in der Sprache: zur Verfügung bzw. wurden in dieser Sprache eingereicht; dabei handelt es sich um

- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen Recherche eingereicht worden ist (nach Regel 23.1(b)).
- ☐ die Veröffentlichungssprache der internationalen Anmeldung (nach Regel 48.3(b)).
- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen vorläufigen Prüfung eingereicht worden ist (nach Regel 55.2 und/oder 55.3).

3. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale vorläufige Prüfung auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das:

- ☐ in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.
- ☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.
- ☐ Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfassten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

4. Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:

THIS PAGE BLANK (USPTO)

- ☐ Beschreibung, Seiten:
☐ Ansprüche, Nr.:
☐ Zeichnungen, Blatt:

5. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)).

(Auf Ersatzblätter, die solche Änderungen enthalten, ist unter Punkt 1 hinzuweisen; sie sind diesem Bericht beizufügen).

6. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:

V. Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

1. Feststellung

Neuheit (N)	Ja: Ansprüche	
	Nein: Ansprüche	1-5,7-10
Erfinderische Tätigkeit (ET)	Ja: Ansprüche	
	Nein: Ansprüche	6
Gewerbliche Anwendbarkeit (GA)	Ja: Ansprüche	1-10
	Nein: Ansprüche	

2. Unterlagen und Erklärungen
siehe Beiblatt

VII. Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung

Es wurde festgestellt, daß die internationale Anmeldung nach Form oder Inhalt folgende Mängel aufweist:
siehe Beiblatt

THIS PAGE BLANK (USPTO)

Zu Punkt V

Begründung der Feststellung nach Regel 66.2(a)(ii) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

1. Es wird auf die folgenden Dokumente verwiesen:

D1: EP-A-0 869 701 (MITSUBISHI CHEM CORP) 7. Oktober 1998 (1998-10-07)

2. Das Bauteil der Ansprüche 1-5, 7-10 ist gegenüber D1 (siehe das ganze Dokument, insbesondere, Fig. 2, Spalte 2, Zeile 20 - Spalte 11, Zeile 53) nicht neu (Art. 33(2) PCT).

D1 offenbart eine organische LED bestehend aus einem Glas-Substrat (1), einer ITO-Anoden Bottom-Elektrode (2), einer Lochleitschicht (3a), einer Emissionsschicht (3b), einer Al-Top-Kathoden-Elektrode (5), und aus einer 0.2 bis 20 nm dicken Ladungsträgerinjektionsschicht (4) aus z.B. Li_3AlF_6 (Spalte 11, Zeile 21).

3. Der Gegenstand des Anspruchs 6 wird durch die Aufzählung der Materialien in Spalte 11, Zeile 13-50 in D1 nahegelegt (Art. 33(3) PCT).

Zu Punkt VII

Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung

Im Widerspruch zu den Erfordernissen der Regel 5.1 a) ii) PCT werden in der Beschreibung weder der in dem Dokument D1 offenbarte einschlägige Stand der Technik noch dieses Dokument angegeben.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

Translation

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

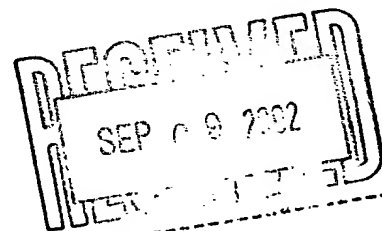
INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

9/937290 7

Applicant's or agent's file reference ./.	FOR FURTHER ACTION See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)	
International application No. PCT/DE/00783	International filing date (day/month/year) 28 February 2001 (28.02.01)	Priority date (day/month/year) 10 March 2000 (10.03.00)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC B21H 3/04		
Applicant BAD DÜBEN PROFILWALZ-MASCHINEN GMBH		

1.	This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.
2.	This REPORT consists of a total of <u>2</u> sheets, including this cover sheet. <input type="checkbox"/> This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT). These annexes consist of a total of _____ sheets.
3.	This report contains indications relating to the following items: I <input checked="" type="checkbox"/> Basis of the report II <input type="checkbox"/> Priority III <input checked="" type="checkbox"/> Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability IV <input type="checkbox"/> Lack of unity of invention V <input checked="" type="checkbox"/> Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement VI <input type="checkbox"/> Certain documents cited VII <input type="checkbox"/> Certain defects in the international application VIII <input type="checkbox"/> Certain observations on the international application



Date of submission of the demand 25 September 2001 (25.09.01)	Date of completion of this report 19 February 2002 (19.02.2002)
Name and mailing address of the IPEA/EP	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

I. Basis of report

1. The basis of international preliminary examination report is the application as originally filed.

III. Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability

2. The question of whether the claimed invention appears to be novel, to involve an inventive step, or to be industrially applicable has not been and will not be the subject of an international preliminary examination (Article 34 (4) a i), ii) PCT; see also international search report) for:

- 2.1 Applications with unnecessary independent claims (not more than one independent claim per category is generally required; Article 6 PCT).
- 2.2 Unsearched subject-matter (Article 17 (2) a), Rule 66.1 e) PCT).

V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability

3. To the extent that the international preliminary examination has been carried out (see item III above), the following is pointed out (Article 35 (2) and (3) b) and Rule 70.7 and 70.8 ii) PCT):

In light of the documents cited in the international search report, it is considered that the invention as defined in the independent claims meets the criteria mentioned in Article 33 (1) PCT, i.e. appears to be novel, to involve an inventive step and to be industrially applicable.

THIS PAGE BLANK (USPTO)